



# Conception et caractérisation de structures sub-longueur d'onde pour l'infrarouge

Christelle Tuambilangana

## ► To cite this version:

Christelle Tuambilangana. Conception et caractérisation de structures sub-longueur d'onde pour l'infrarouge. Optique [physics.optics]. Université Paris Diderot-Paris VII, 2015. Français. NNT : . tel-01167910

**HAL Id: tel-01167910**

**<https://theses.hal.science/tel-01167910>**

Submitted on 25 Jun 2015

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# THÈSE

présentée pour obtenir le diplôme de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ PARIS DIDEROT-PARIS 7

Spécialité **PHYSIQUE**

École doctorale **PHYSIQUE EN ÎLE-DE-FRANCE (ED 564)**



par

**Christelle Tuambilangana**

---

## Conception et caractérisation de structures sub-longueur d'onde pour l'infrarouge

---



LABORATOIRE  
DE PHOTONIQUE  
ET DE NANOSTRUCTURES



Soutenue publiquement le 18 mai 2015 devant le jury composé de :

M. RENAUD BACHELOT  
M. NICOLAS BONOD  
M. PIERRE CHAVEL  
M. THOMAS COUDREAU  
M. RIAD HAÏDAR  
M. FABRICE PARDO

Rapporteur  
Rapporteur  
Examineur  
Président du jury  
Directeur de thèse  
Encadrant





*It takes the PhD to get it.*



# Remerciements

Dans un manuscrit de thèse, les pages de remerciements viennent traditionnellement clore les années de dur labeur qui précèdent dans le meilleur des cas l'obtention du diplôme de Docteur. Me trouvant aujourd'hui dans cette position, je ne voudrais oublier aucune des personnes ayant contribué de près ou de loin à ce que certains annonçaient comme un petit miracle. Cependant, malgré le soin apporté à la rédaction de ces pages toujours attentivement scrutées, il est possible que j'oublie de nommer certains, et ce, alors que d'autres ne sauront jamais à quel point une parole, un sourire ou même un regard ont pu m'encourager, voire me toucher.

J'aimerais tout d'abord exprimer ma gratitude à M. Renaud Bachelot et M. Nicolas Bonod pour avoir consacré un temps précieux à rapporter ce manuscrit, à M. Pierre Chavel et M. Thomas Coudreau pour m'avoir fait l'honneur de prendre part à mon jury de soutenance, et à tous pour avoir manifesté un aussi grand intérêt pour mon travail.

Je voudrais également remercier toutes les personnes rencontrées à l'Université Paris Diderot - notamment dans le cadre de mon monitorat- ainsi qu'au Laboratoire de Photonique et de Nanostructures et à l'ONERA. Je dois à Dominique Mailly, directeur du LPN, et son prédécesseur Jean-Yves Marzin le grand privilège d'avoir pu intégrer le LPN et d'avoir pu y mener mes travaux de thèse dans des conditions remarquables. Je tiens à remercier Thomas Coudreau (à nouveau) et Sylvie Hénon pour leur action déterminante en tant que directeurs de l'école doctorale, ainsi que Joëlle Taïeb pour sa très grande disponibilité et sa gentillesse à mon égard. Je souhaite remercier Loïc Lanco et bien d'autres pour m'avoir fait découvrir leur métier d'enseignant-chercheur, cette parenthèse constituant l'une des expériences les plus enrichissantes de ma thèse. Je tiens également à remercier Patricia Cymbalista pour le soutien chaleureux qu'elle m'a témoigné, ainsi que Valérie Delrue, Brigitte Commelin et Christèle Carette pour leur aide logistique indispensable côté ONERA.

Je remercie Riad Haïdar pour avoir dirigé cette thèse avec le dynamisme et la réactivité qui le caractérisent. Merci à Petru Ghenuche, Grégory Vincent et Julien Jaeck pour leur coups de main ; merci de m'avoir mis le pied à l'étrier en m'initiant aux mesures sur le montage Gonio Visir et la fabrication de membranes en SiNx. Grand merci à Patrick Bouchon pour ses conseils et son aide dans la préparation de ma soutenance, la relecture d'article et... son engagement désintéressé depuis tant d'années aux côtés des Cherbourgeois ! Je voudrais remercier Jean-Luc Pelouard de m'avoir accueillie et "recueillie" dans

son équipe, pour son intérêt et le soin apporté au bon déroulement de ma thèse. Je voudrais remercier les occupants du "bureau des possibles" Nathalie Bardou et Christophe Dupuis (dit Cristobal l'Ancien ou encore le technologue boiteux). Je ne te remercierai jamais assez Nathalie pour tes encouragements et les innombrables vendredis soirs passés à préparer les insulations du weekend. Christophe sache que tu trust les premières places des discussions les plus improbables en salle blanche : merci pour ça... et surtout pour l'immense générosité que tu déploies dans ton travail ! Merci à Fabrice Pardo pour avoir fait preuve d'une patience infinie et offert une aide et un soutien inestimables. Merci également pour la confiance que tu m'as accordée et la sérénité que tu m'as apportée. Merci pour le plus important dans ton encadrement : je me suis bien amusée !

Ce travail n'aurait pas pu voir le jour sans "l'armée du D6" : merci à Laurent Couraud, Christian Ulysse, Stéphane Guilet, Laurence Ferlazzo, Edmond Cambril, Xavier Lafosse, Christophe Roblin et tant d'autres !

Je souhaite remercier chaleureusement l'ensemble de mes camarades post-docs et thésards. Merci à Thomas, Charlie, Florian, Inès, Ha, Quentin, Benoît, "Piou-Piou" (il se reconnaîtra et veut sûrement rester anonyme), Claire d'avoir été d'aussi bons compagnons de route. J'embrasse chaleureusement Nicolas, que je suis toujours tentée de qualifier du "meilleur d'entre nous", en tout cas très certainement le plus gentil : merci pour ton soutien (poke à Marie !). Merci à Clément, et par extension à Cécile, pour votre sollicitude, votre amitié et pour tous les bons moments passés ensemble. Merci à Alex, l'initiateur de nos soirées "MCT" (et oui c'est cocasse dit comme ça) pour ta légèreté, nos joutes verbales vont me manquer ; et surtout merci de m'avoir fait découvrir Auto-Passion ! À Juan pour son adorable flegme et son humour. Gros bisous à Madame Goffard, ce fût réellement un plaisir de te côtoyer. À Émilie pour son altruisme et pour m'avoir prêté son sujet de thèse ; je souhaite d'ailleurs bonne continuation à Cécile sur cette thématique. Merci à mon camarade normand Benjamin, parce qu'on oublie trop facilement la tendresse dans ce monde... Merci à Émilie pour sa bonne humeur et sa gentillesse au quotidien. Encore bravo pour ta nouvelle affectation, je te souhaite bon retour dans l'Est, tu l'as bien méritée ! Je tiens à remercier Paul pour avoir été en plus d'un "co-bureau" attentionné, un compagnon de voyage exceptionnel en conférences et quasiment mon chauffeur personnel pendant presque deux ans ; ces trajets en voiture furent l'occasion de discussions débridées au cours desquelles à peu près tous les sujets ont été abordés. Depuis mon départ une question me taraude cependant : mais qui va garder les enfants ? Je compte sur toi Paul et en profite pour souhaiter bon courage à Thomas, Fayçal, Clément, Manon, Mathilde, BenJ, Pedro, Mickaël et Antoine pour la suite et parfois la fin de leur thèse (merci à tous également !). Merci encore à Hugo, Anne-Claire (longue vie à Kléria btw !) et Hamad, collègues du D1 charmants bien qu'extérieurs à notre groupe choral. Bonne chance à Said qui saura j'en suis sûre trouver sa voie au LPN ; merci pour ton amitié.

Merci à Stefano, Simon, Petar, Théo, Alejandra, Dr. NQL et Thomas pour toutes ces soirées entre thésards passées à refaire le monde (pour la version officielle). Merci à vous d'avoir partagé cette période inoubliable de ma (notre) vie. Part entière de cette aventure parisienne, je remercie également Laure, Jules, Lazare, Julien et Olivier pour tous les concerts, BBQs à Bagnolet, vacances en Italie, wee-

kend à Marseille et j'en passe, toujours dans un esprit indescriptible crétois-Marx-Dormoy... J'ai de plus la chance d'avoir des copines géniales, Julie, Constance, Kachi, Élo, Hélo, Julie, Aurélie, Caro mais aussi Doris et Nadia : merci les filles de m'avoir autant encouragée. Merci aux familles Ledu, Nzemba, Mvondo et Nkuka pour l'intérêt porté à cette thèse. Je remercie la famille Manceau dans son ensemble et particulièrement Daniel et Liliane pour leurs bonnes ondes et pour m'avoir autant choyée pendant toutes ces années d'étude ; merci à Jean-Michel et Kasia pour l'exemple, cela a été une véritable chance de vous avoir si proches. Merci à mon équipe : Carine, Thomas, Malia, Fafa, Micha, je vous aime. Je remercie mes parents bien-aimés pour m'avoir transmis la sagesse et le courage nécessaires pour terminer cette thèse, et finalement tellement plus !

Last but not least, merci Mathieu pour ton soutien et ton amour inconditionnels : cette thèse est peut être à moitié la tienne. Que de chemin parcouru depuis Chateaubriand, 10 ans déjà... Rendez-vous maintenant à Erlangen pour écrire la suite des aventures des désormais Docteurs Baba et Loulou, *zusammen* et *entangled*.



# Table des matières

<b>Remerciements</b>	<b>v</b>
<b>Nomenclature</b>	<b>xiii</b>
<b>Introduction</b>	<b>1</b>
 <b>I Mesure d'indices optiques de matériaux conventionnels et de nanomatériaux artificiels</b>	 <b>5</b>
<b>1 Motivations pour la caractérisation de nanomatériaux optiques artificiels</b>	<b>7</b>
1.1 Introduction . . . . .	7
1.2 Homogénéisation en limite quasi-statique . . . . .	9
1.2.1 Biréfringence de forme . . . . .	9
1.2.2 Théories des milieux effectifs . . . . .	11
1.3 Homogénéisation de structures périodiques dans le domaine sub-longueur d'onde . . .	13
1.3.1 Développement de l'indice effectif en série de Taylor . . . . .	13
1.3.2 La dispersion spatiale . . . . .	14
1.3.3 Cas des structures périodiques . . . . .	15
1.3.4 Conception de propriétés optiques et caractéristiques de propagation . . . . .	17
1.4 Algorithme d'extraction de paramètres effectifs à partir de coefficients complexes de transmission et de réflexion d'une couche de métamatériau . . . . .	17
1.5 Conclusion . . . . .	20
Références . . . . .	21
 <b>2 État de l'art des techniques de caractérisation de nanomatériaux optiques artificiels</b>	 <b>25</b>
2.1 Introduction . . . . .	25
2.2 Recherche de correspondance entre des mesures expérimentales d'intensités et des simulations numériques . . . . .	26
2.3 Mises en évidence directe de la propriété de réfraction négative . . . . .	27
2.4 Méthodes interférométriques . . . . .	29
2.5 Cas particuliers des nanostructures planaires . . . . .	30



2.6	Conclusion . . . . .	30
	Références . . . . .	31
<b>3</b>	<b>Méthode de détermination d'amplitudes complexes à l'aide de réseaux diffractifs</b>	<b>33</b>
3.1	Introduction . . . . .	33
3.2	Principe . . . . .	33
3.3	MULTICS : outil de calcul d'amplitudes complexes pour des empilements multi-couches	36
3.3.1	Coefficients de Fresnel de réflexion et de transmission . . . . .	36
3.3.2	Calcul par récurrence des amplitudes complexes pour des empilements multi-couches . . . . .	38
3.4	Application de la méthode au nitrure de silicium . . . . .	40
3.4.1	Influence du substrat . . . . .	41
3.4.2	La solution des échantillons suspendus . . . . .	45
3.5	Incertitudes sur la détermination de la permittivité . . . . .	46
3.6	Conclusion . . . . .	48
	Références . . . . .	48
<b>4</b>	<b>Application : caractérisation de matériaux isotropes conventionnels</b>	<b>51</b>
4.1	Introduction . . . . .	51
4.2	Fabrication d'échantillons suspendus en nitrure de silicium . . . . .	51
4.3	Mesures en transmission et réflexion résolues en angle . . . . .	54
4.3.1	Montage expérimental . . . . .	54
4.3.2	Traitement des données expérimentales . . . . .	56
4.4	Résultats . . . . .	58
4.4.1	Mesures en transmission . . . . .	58
4.4.2	Mesures en réflexion . . . . .	59
4.4.3	Détermination de la permittivité . . . . .	61
4.5	Caractérisation du silicium . . . . .	61
4.5.1	Fabrication d'échantillons suspendus en silicium . . . . .	62
4.5.2	Perspectives . . . . .	62
4.6	Conclusion . . . . .	64
	Références . . . . .	64
<b>II</b>	<b>Conception de filtres métal-diélectriques à résonance de mode guidé</b>	<b>67</b>
<b>5</b>	<b>Filtrage spectral dans l'infrarouge</b>	<b>69</b>
5.1	Introduction . . . . .	69
5.1.1	Le rayonnement infrarouge . . . . .	69
5.1.2	Applications de l'infrarouge . . . . .	71
5.2	Filtres à résonance de mode guidé . . . . .	73
5.2.1	Définition . . . . .	73

5.2.2	Amélioration de la réjection . . . . .	74
5.2.3	Tolérance angulaire . . . . .	75
5.3	Influence de la symétrie dans la conception de filtres infrarouge . . . . .	76
5.3.1	Influence de la symétrie pour des filtres à base de nanostructures métalliques . . . . .	76
5.3.2	Exemple des filtres Fabry-Perot . . . . .	77
5.4	Conclusion . . . . .	80
	Références . . . . .	80
<b>6</b>	<b>Symétrisation de filtres métal-diélectriques à résonance de mode guidé</b>	<b>83</b>
6.1	Formalisme matriciel . . . . .	84
6.1.1	Analyse de la résonance . . . . .	84
6.1.2	Calcul de la transmission . . . . .	86
6.2	Symétrisation des filtres GMR . . . . .	88
6.2.1	Critère de symétrie . . . . .	88
6.2.2	Résultats et discussion . . . . .	88
6.3	Conclusion . . . . .	92
	Références . . . . .	93
<b>7</b>	<b>Conception de filtres GMR tolérants angulairement sur substrat</b>	<b>95</b>
7.1	Introduction . . . . .	95
7.2	Travaux préliminaires . . . . .	96
7.2.1	Simulations de filtres GMR sur substrat . . . . .	96
7.2.2	Réalisation technologique . . . . .	97
7.3	Symétrisation de filtres GMR tolérants angulairement . . . . .	98
7.3.1	Symétrisation de la structure bi-atome . . . . .	100
7.3.2	Insertion d'une couche anti-reflet . . . . .	100
7.4	Application : limiteur de champ en bande III . . . . .	102
7.4.1	Choix de matériaux . . . . .	102
7.4.2	Vers des filtres coniques tolérants angulairement . . . . .	103
7.5	Conclusion . . . . .	103
	Références . . . . .	104
	<b>Résumé &amp; Perspectives</b>	<b>107</b>
	<b>Annexes</b>	<b>110</b>
<b>A</b>	<b>Fabrication d'échantillons suspendus</b>	<b>113</b>
A.1	Gravure chimique du SiNx . . . . .	113
A.2	Protection de la couche de SiNx . . . . .	113
A.3	Propriétés mécaniques des échantillons suspendus . . . . .	115
	Références . . . . .	117

<b>B Fabrication de la structure bi-atome</b>	<b>119</b>
B.1 Fabrication d'une structure suspendue encapsulée . . . . .	119
B.2 Fabrication sur substrat . . . . .	120
Références . . . . .	121
<b>Index</b>	<b>124</b>

# Nomenclature

Au	Or
BCB	Benzocyclobutène
FDTD	<i>Finite-Difference Time-Domain</i>
FP	Fabry-Perot
FTIR	<i>Fourier Transform Infrared</i>
GMR	<i>Guided Mode Resonance</i>
InSb	Antimoniure d'Indium
IR	Infrarouge
MCT	Mercure Cadmium Tellure
Ni	Nickel
PECVD	<i>Plasma-Enhanced Chemical Vapor Deposition</i>
PMMA	Polyméthacrylate de méthyle
RCWA	<i>Rigorous Coupled Wave Analysis</i>
RMCA	<i>Rigorous Maxwell Constitutive Approximation</i>
Si	Silicium
SiC	Carbure de silicium
SiN <sub>x</sub>	Nitrure de silicium
SiO <sub>2</sub>	silice
SOI	<i>Silicon On Insulator</i>
SRR	<i>Split Ring Resonator</i>
TE	Transverse électrique
TM	Transverse magnétique
TMAH	Hydroxyde de tetraméthylammonium
UV	Ultraviolet
ZnSe	Sélénure de zinc

# Introduction

## Contexte de la thèse

Ma thèse s'est déroulée sous la direction de Riad Haïdar au sein de l'entité MiNaO (Micro et Nano Optique) commune au CNRS et à l'ONERA. Issu de la réunion de l'unité CIO du Département d'optique de l'ONERA et de l'équipe Phydys du Laboratoire de Photonique et de Nanostructures du CNRS, ce laboratoire commun mène des recherches visant à développer des concepts issus de nanotechnologies pour réaliser et caractériser de nouveaux composants pour l'optique infrarouge. Les aspects fondamentaux des systèmes métal-diélectriques micro- et nanostructurés sont constamment étudiés, ce qui profite aux applications de filtrage spectral, d'imagerie et de détection infrarouge.

## Objectifs de la thèse

Le but de ma thèse est de proposer de nouvelles approches pour la conception de structures périodiques sub-longueur d'onde opérant dans l'infrarouge. Pour des structures  $\Lambda$ -périodiques, le rapport  $\lambda/\Lambda$  définit des domaines spectraux caractérisés par des propriétés optiques très différentes, comme le montre la figure 1.

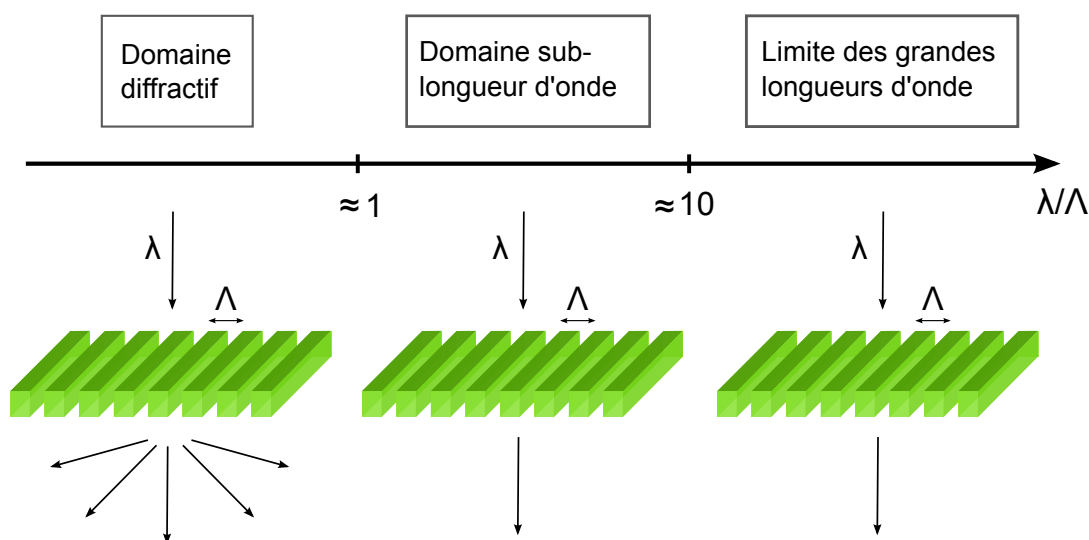
Les structures périodiques peuvent être considérées comme des matériaux homogènes dans la limite des grandes longueurs d'onde, c'est-à-dire pour  $\lambda/\Lambda \gg 10$ . Au contraire, un rapport  $\lambda/\Lambda \ll 1$  sera caractérisé par la présence de plusieurs ordres de diffraction. Entre les deux, les propriétés optiques et les résonances des nanostructures dans le domaine sub-longueur d'onde sont dues à des mécanismes physiques différents, suivant que la propagation des ondes dans le matériau est décrite par un ou plusieurs modes ou ordres. Les métamatériaux par exemple, dont les propriétés optiques sont sans équivalents pour les matériaux naturels, existent typiquement dans ce domaine.

Au cours de cette thèse, je me suis intéressée à la conception de structures sub-longueur d'onde dans deux cas différents :

1. un seul mode électromagnétique est propagatif dans le matériau. Dans ce cas, la question posée est celle de l'homogénéisation, c'est-à-dire la possibilité de décrire la réponse optique de la structure un indice de réfraction effectif. Obtenir une valeur d'indice effectif précise -notamment négative- est souvent la stratégie suivie pour la conception de métamatériaux. J'ai ainsi évalué la pertinence de cette approche en étudiant les conditions de l'homogénéisation et proposé une méthode de caractérisation applicable à des matériaux artificiels, même quand l'indice effectif ne

peut être défini.

2. plusieurs ordres diffractés sont propagatifs dans le matériaux. Dans ce cas, les propriétés optiques étudiées sont des résonances résultant de la combinaison de modes guidés. Couplés par la diffraction par un même réseau périodique, leur interaction complexe permet de construire un mode résonnant localisé, qui peut être excité de manière relativement indépendante de l'angle d'incidence.



**FIGURE 1** – Définition de domaines de fonctionnement de structures périodiques en fonction du rapport longueur d'onde/période  $\lambda/\Lambda$ .

## Organisation du manuscrit

Ce manuscrit se décompose en deux parties. La première est consacrée à la mesure d'indice optique par détermination des coefficients complexes de transmission et de réflexion. Cette détermination permet de caractériser des propriétés intéressantes pour l'infrarouge, notamment les propriétés anisotropes, par exemple pour les applications de super-lentille ou de focalisation.

La deuxième partie vise d'emblée une application : elle est dédiée à la conception de filtres spectraux à résonance de mode guidé.

## Première partie

Le **chapitre 1** traite de l'homogénéisation de matériaux optiques artificiels. J'explique pourquoi et dans quels cas un indice effectif ne peut être défini. Dans le cas où les interactions onde/matière sont décrites par un seul mode de constante  $k_z$ , la surface isofréquence suffit à décrire entièrement la propagation dans le matériau. Adopter cette description pour des métamatériaux à indice négatif par exemple permet de montrer effectivement la propriété de matériau main-gauche et de vérifier l'isotropie, qui est une condition nécessaire pour pouvoir définir un indice effectif. Un algorithme d'inversion est introduit permettant d'extraire la constante de propagation  $k_z$ , connaissant uniquement l'épaisseur  $d$  du

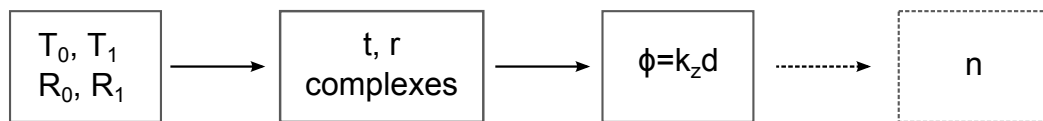
matériau, à partir de coefficients complexes de transmission et de réflexion  $t$  et  $r$  ; un indice effectif  $n$  peut également être extrait le cas échéant.

Le **chapitre 2** examine plusieurs méthodes de caractérisation de matériaux artificiels. Plus particulièrement, les méthodes interférométriques permettant d'accéder aux informations sur la phase des ondes transmises ou réfléchies sont comparées en fonction de deux critères :

- la possibilité de réaliser les caractérisations sur de larges plages continues de longueurs d'onde,
- la possibilité de réaliser les mêmes caractérisations à incidence oblique afin de déterminer les propriétés angulaires des composants.

Le **chapitre 3** introduit la méthode expérimentale de détermination de d'amplitudes complexes à l'aide de réseaux diffractifs constitués des matériaux à caractériser. Cette méthode consiste à extraire les coefficients  $r$  et  $t$  à partir des intensités diffractées par les réseaux en transmission et réflexion.

La validité de cette méthode est testée dans le **chapitre 4**, en étant appliquée à un matériau isotrope naturel : le nitrure de silicium. Des échantillons suspendus sont fabriqués et des mesures par spectroscopie infrarouge résolues en angle sont effectuées. Les différentes étapes permettant la détermination de l'indice  $n$  à partir d'intensités diffractées par les réseaux sont résumées sur la figure 2.



**FIGURE 2** – Différentes étapes de la méthode de mesure d'indices optiques de matériaux conventionnels et de nano-matériaux artificiels à partir d'intensités diffractées  $T_0, T_1, R_0$  et  $R_1$ .

## Deuxième partie

La deuxième partie est consacrée à la conception de structures métal-diélectriques pour le filtrage spectral infrarouge. Le **chapitre 5** détaille donc l'origine du rayonnement infrarouge et présente des applications dans ce domaine spectral. Les filtres infrarouge métal-diélectriques à résonance de mode guidé (GMR) sont introduits et leurs propriétés examinées : sensibilité à la polarisation, réjection, tolérance angulaire.

L'influence de la symétrie sur la réponse optiques des filtres GMR métal-diélectriques est étudiée dans le **chapitre 6** : la problématique est la conception de ces structures GMR sur substrat. Un formalisme matriciel est introduit permettant de définir et restaurer la symétrie des structures GMR.

Ce nouveau cadre mathématique est appliqué dans le **chapitre 7** à la conception de filtres GMR tolérants angulairement sur substrat.





## **Première partie**

# **Mesure d'indices optiques de matériaux conventionnels et de nanomatériaux artificiels**

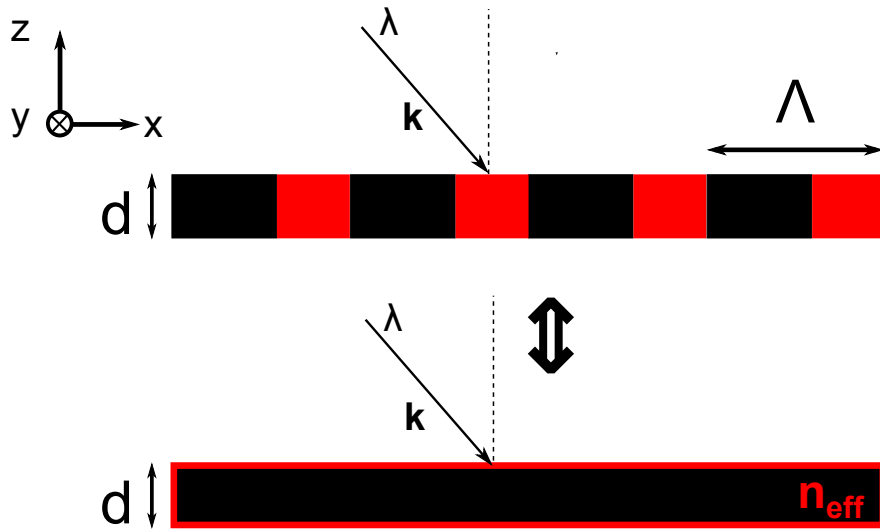


## Chapitre 1

# Motivations pour la caractérisation de nanomatériaux optiques artificiels

Mon objectif est d'étudier l'homogénéisation de nanomatériaux artificiels. Ce chapitre a pour but d'énoncer les conditions nécessaires à l'attribution d'un indice de réfraction effectif. La possibilité de définir cet indice est discutée pour le domaine sub-longueur d'onde. Cependant, ces matériaux sont souvent anisotropes, et un indice effectif unique ne peut pas toujours être défini. Une approche est finalement introduite pour extraire un ou plusieurs indices, ou plus généralement des paramètres effectifs de propagation ; elle sera appliquée dans le chapitre 4 à des matériaux conventionnels isotropes.

### 1.1 Introduction



**FIGURE 1.1** – Schéma illustrant l'équivalence vis-à-vis d'une onde incidente de vecteur d'onde  $\mathbf{k}$  à la longueur d'onde  $\lambda$ , entre un matériau artificiel  $\Lambda$ -périodique constitué de deux matériaux homogènes conventionnels, et un matériau homogène effectif d'indice  $n_{\text{eff}}$ , de même épaisseur  $d$ .

La question posée par l'homogénéisation est celle de l'équivalence entre un matériau artificiel (ou composite) et un matériau constitué d'un milieu homogène d'indice effectif  $n_{\text{eff}}$  (cf figure 1.1). Par

la suite, les deux matériaux équivalents sont supposés de même épaisseur physique  $d^1$ . La description d'un matériau composite par un indice effectif est souhaitable car les interactions lumière-matière peuvent dans ce cas être restreintes à un problème de réfraction-réflexion, et considérablement simplifiées par les relations de Fresnel.

En premier lieu, la caractérisation d'un matériau composite par un indice effectif nécessite que l'onde électromagnétique se propageant dans le milieu ne "voie" pas ses inhomogénéités. Ainsi pour un matériau artificiel  $\Lambda$ -périodique, l'approximation est d'autant plus correcte que la longueur d'onde est grande devant la période, comme illustré sur la figure 1.2 (a); la condition  $\lambda \gg \Lambda$  correspond à la limite quasi-statique [2]. Dans ce cas, les amplitudes des composantes du champ électrique parallèles aux interfaces et de la composante du champ déplacement électrique perpendiculaire aux interfaces varient peu en fonction de la position à l'échelle d'une période. Pour des matériaux constitutifs 1 et 2 isotropes, un tenseur de permittivité effectif peut souvent être défini en moyennant les champs électromagnétiques, mettant en évidence des propriétés uniaxes ou biaxes. Deux modes électromagnétiques sont supportés par un milieu uniaxe : le mode ordinaire et le mode extraordinaire. L'équivalence entre un matériau périodique 1D et un matériau uniaxe est démontrée théoriquement en limite quasi-statique [3, 4]. Le tenseur de permittivité implique une surface isofréquence circulaire pour le mode ordinaire et elliptique pour le mode extraordinaire<sup>2</sup>. L'intersection de ces deux courbes avec l'axe  $k_z$  permet d'extraire l'indice ordinaire  $n_o$  et l'indice extraordinaire  $n_{eo}$ . Ainsi, deux indices permettent la description de ce milieu homogène uniaxe. Cependant, une onde extraordinaire se propageant dans une direction oblique donnée, définie par un vecteur d'onde  $\mathbf{k}$ , voit un indice effectif différent de  $n_{eo}$  et de  $n_o$  ( $|\mathbf{k}| \neq n_{eo} \frac{\omega}{c}$ ). Cela illustre la différence entre les paramètres du matériau ( $n_o$  et  $n_{eo}$ ) et les paramètres de propagation, les premiers étant insuffisants pour caractériser la propagation des ondes à incidence oblique. Par exemple, pour une onde extraordinaire se propageant à incidence oblique, le vecteur de Poynting, perpendiculaire à la surface isofréquence, donne la direction du flux d'énergie qui n'est alors pas colinéaire au vecteur d'onde.

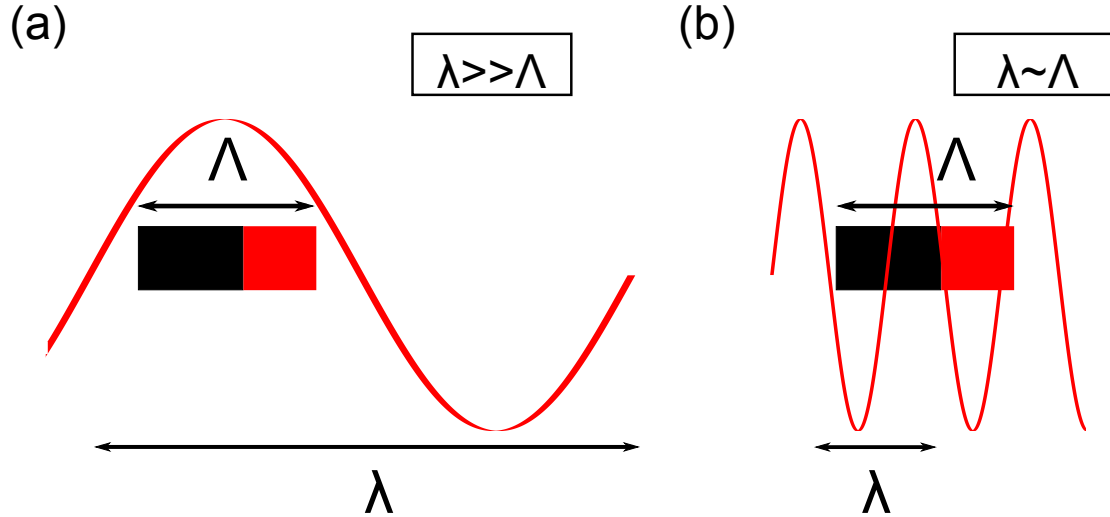
L'homogénéisation permet également pour concevoir des métamatériaux à indice négatif, c'est-à-dire avec  $n_{\text{eff}} < 0$ . Les métamatériaux à indice négatif ont été introduits d'un point de vue théorique par Veselago en 1968 [5] : un milieu présentant simultanément une permittivité  $\epsilon$  et une perméabilité  $\mu$  négatives a un indice de réfraction négatif  $n = -\sqrt{\epsilon\mu}$ . Sous ces conditions, le vecteur d'onde  $\mathbf{k} = (k_x, k_y, k_z)$  et le vecteur de Poynting sont anti-parallèles : cela signifie que la phase et l'énergie de l'onde se propagent en sens opposés avec  $k_z < 0$ . Un indice négatif correspond ainsi à une propriété de propagation non conventionnelle. De tels matériaux dits main-gauche sont réalisables en assemblant des briques élémentaires présentant une forte réponse électrique et une forte réponse magnétique simultanément. Les Split Ring Resonators (SRRs) sont des nano-objets métalliques susceptibles d'être utilisés comme briques élémentaires pour constituer ces milieux composites (première réalisation d'un matériau à indice négatif avec des SRRs dans le domaine des micro-ondes en 2001 par Shelby *et al.* [6]). Cependant, aux fréquences optiques, les milieux à indice négatif composés de

1. D'autres travaux proposent des matériaux équivalents en recherchant un indice effectif et une épaisseur optique [1] à la fois.

2. Dans l'ensemble du manuscrit, je distinguerai les termes de *relation de dispersion* et de *surface isofréquence*. La *relation de dispersion* est la courbe  $k_z = k_z(k_{||}, \omega)$  à incidence fixée par  $k_{||}$  et la *surface isofréquence* est la courbe  $k_z = k_z(k_{||}, \omega_0)$  à la fréquence  $\omega_0$  fixée. A noter, une *surface isofréquence* circulaire ou elliptique fait référence à la partie réelle de  $k_z$ .

SRRs ne peuvent être obtenus que dans le domaine sub-longueur d'onde c'est-à-dire quand  $\lambda \sim \Lambda$  (cf figure 1.2(b)) car les résonances associées tendent à disparaître en se rapprochant de la limite quasi-statique [7, 8]. Par ailleurs, l'homogénéisation est plus complexe d'un point de vue théorique dans le domaine sub-longueur d'onde.

Je souhaite donc étudier dans quelle mesure l'homogénéisation est utile dans la conception de proprié-



**FIGURE 1.2** – Schéma illustrant les domaines définis par le ratio période/longueur d'onde pour un matériau 1D  $\Lambda$ -périodique : (a) la limite quasi-statique quand  $\lambda \gg \Lambda$  et (b) le domaine sub-longueur d'onde  $\lambda \sim \Lambda$ .

tés optiques reposant éventuellement sur des caractéristiques de propagation non conventionnelles. Je distinguerai l'homogénéisation en limite quasi-statique de celle dans le domaine sub-longueur d'onde. Dans les deux cas, des paramètres effectifs seront définis. Dans la limite quasi-statique, les matériaux, homogènes, ont un indice effectif pour lequel une expression analytique peut être établie. Dans le domaine sub-longueur d'onde, l'indice effectif pourra être défini comme l'indice de Bloch du mode fondamental ou du mode le moins atténué pour des structures périodiques. Je décrirai finalement l'algorithme d'inversion mis en œuvre dans le chapitre 4 qui permet d'extraire ces paramètres effectifs à partir de coefficients complexes de transmission et de réflexion.

## 1.2 Homogénéisation en limite quasi-statique

En limite quasi-statique, les matériaux sont équivalents à des milieux homogènes. Je ne considère que des matériaux non magnétiques ( $\mu = 1$ ) pour constituer les composites, comme c'est principalement le cas aux longueurs d'ondes optiques. La détermination de la constante diélectrique de ces matériaux artificiels est toutefois différente suivant qu'ils soient uni-, bi- ou tri-dimensionnels.

### 1.2.1 Biréfringence de forme

Considérons un matériau  $\Lambda$ -périodique selon l'axe  $x$  comme celui de la figure 1.1, fait de deux matériaux diélectriques 1 et 2 de permittivités  $\epsilon_1$  et  $\epsilon_2$  complexes. L'anisotropie géométrique de cette

structure entraîne une biréfringence dite de forme [9]. Les fractions volumiques  $f_1$  et  $f_2$  sont introduites, avec  $f_1 + f_2 = 1$ .

Considérons tout d'abord une onde incidente polarisée selon  $x$  telle que son champ électrique est perpendiculaire à l'interface entre les deux milieux 1 et 2. En limite quasi-statique, le champ dans chacun des matériaux peut être considéré uniforme. La composante normale de l'induction électrique est nécessairement continue à l'interface entre les deux milieux diélectriques. Par conséquent, l'induction électrique  $\mathbf{D}$  a la même valeur dans les deux milieux diélectriques et s'écrit en fonction des champs électriques  $\mathbf{E}_1$  et  $\mathbf{E}_2$

$$\mathbf{D} = \epsilon_1 \mathbf{E}_1 \quad \text{ou} \quad \mathbf{D} = \epsilon_2 \mathbf{E}_2, \quad (1.1)$$

et le champ électrique moyen  $\langle \mathbf{E} \rangle$  sur le volume total s'écrit

$$\langle \mathbf{E} \rangle = \frac{f_1}{\epsilon_1} \mathbf{D} + \frac{f_2}{\epsilon_2} \mathbf{D}. \quad (1.2)$$

Une permittivité effective associée à un champ électrique perpendiculaire aux interfaces  $\epsilon_\perp$  peut ainsi être introduite, avec  $\mathbf{D} = \epsilon_\perp \langle \mathbf{E} \rangle$  :

$$\epsilon_\perp = \left( \frac{f_1}{\epsilon_1} + \frac{f_2}{\epsilon_2} \right)^{-1} = \left\langle \frac{1}{\epsilon} \right\rangle^{-1}. \quad (1.3)$$

De même, pour une onde incidente polarisée  $y$  ou  $z$  telle que son champ électrique est parallèle à l'interface, la continuité de la composante tangentielle du champ électrique permet d'écrire

$$\mathbf{D}_1 = \epsilon_1 \mathbf{E} \quad \text{et} \quad \mathbf{D}_2 = \epsilon_2 \mathbf{E}, \quad (1.4)$$

$\mathbf{E}$  étant constant dans les milieux diélectriques 1 et 2. Une permittivité effective, associée à un champ électrique parallèle aux interfaces est également introduite en moyennant l'induction électrique sur le volume total :  $\langle \mathbf{D} \rangle = \epsilon_\parallel \mathbf{E}$ . On obtient :

$$\epsilon_\parallel = f_1 \epsilon_1 + f_2 \epsilon_2 = \langle \epsilon \rangle. \quad (1.5)$$

Un matériau 1D périodique présentant une biréfringence de forme est décrit par un indice ordinaire  $n_o = (\epsilon_\parallel)^{\frac{1}{2}}$  et un indice extraordinaire  $n_{eo} = (\epsilon_\perp)^{\frac{1}{2}}$ . La permittivité effective est un tenseur  $\hat{\epsilon}$  d'un matériau uniaxe qui s'écrit

$$\hat{\epsilon} = \begin{pmatrix} \epsilon_\perp & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_\parallel & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_\parallel \end{pmatrix}, \quad (1.6)$$

suivant les coordonnées cartésiennes définies sur la figure 1.1. Les deux surfaces isofréquences, circulaire pour la polarisation TE (champ électrique perpendiculaire au plan d'incidence  $xz$ ) et elliptique TM (champ magnétique perpendiculaire au plan d'incidence  $xz$ ), sont établies connaissant le tenseur de permittivité [10] ; elles permettent finalement une analyse complète de la propagation des ondes dans ce matériau (phase, flux d'énergie) dans toutes les directions.

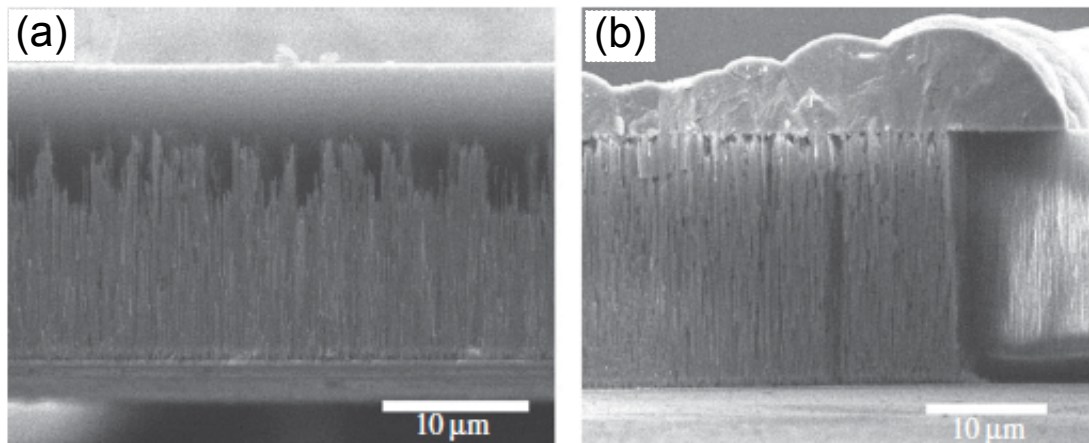
Les expressions analytiques simples pour ces indices permettent de concevoir facilement des dispositifs exploitant cette biréfringence de forme, comme par exemple des lames à retard [11–13], des polariseurs [14, 15] ou des couches anti-reflets [16].

### 1.2.2 Théories des milieux effectifs

L'équivalence entre des matériaux artificiels 2D ou 3D et des milieux homogènes uniaxes ou biaxes, plus complexe à démontrer, est souvent admise en limite quasi-statique. Les théories des milieux effectifs visent à relier la permittivité effective des matériaux composites à celles de leurs constituants [17]. La formule de Rayleigh donne par exemple la permittivité effective d'un milieu composé d'inclusions sphériques dans un milieu homogène en fonction du seul paramètre de fraction volumique des sphères [18]. La théorie de Maxwell-Garnett [19] a été utilisée à plusieurs reprises pour déterminer les permittivités associées à des milieux composés de nanofils semiconducteurs [20] ou métalliques considérés uniaxes [21–23] alignés verticalement dans l'air ou dans une matrice diélectrique. Dans ce cas la théorie de Maxwell-Garnett repose sur deux approximations :

- (i) le champ électrique est homogène suivant une section horizontale d'un nanofil,
- (ii) le champ à l'extérieur des nanofils est égal au champ externe d'excitation du système.

L'approximation (i) est valable quand la fraction volumique des nanofils  $f_1$  est faible ( $f_1 \ll 1$ ). La réalisation technologique de la condition de la limite quasi-statique  $\lambda \gg \Lambda$  nécessite des milieux de nanofils denses. Satisfaire la condition  $f_1 \ll 1$  a été permis par la croissance électrochimique d'argent dans des matrices poreuses diélectriques [22, 23] et par croissance épitaxiale [20, 24], selon une approche de fabrication *bottom-up* (voir figure 1.3). En fait, il faut craindre que ces contraintes soient incontournables pour des milieux désordonnés et que la réduction d'échelle ne soit pas toujours possible pour des milieux composites périodiques.



**FIGURE 1.3** – Vues de coupe par microscopie électronique à balayage de nanofils d'argent dans une matrice poreuse d'alumine extraites de la référence [23], (a) au centre de l'échantillon et (b) au bord de l'échantillon, les nanofils ayant une vitesse de croissance plus faible au bord. La distance moyenne entre les nanofils de diamètre moyen 50 nm est de 110 nm. Le phénomène de réfraction négative est mise en évidence à  $\lambda = 600$  nm.

L'approximation (ii) est vérifiée uniquement quand les nanofils sont distribués de façon isotrope. Dans

le cas de nanofils alignés verticalement considérés comme un milieu uniaxe ou biaxe, seule la dernière composante diagonale du tenseur de permittivité a une expression analytique simple égale à  $\langle \epsilon \rangle$  [25]. Pour calculer les deux premières composantes diagonales du tenseur de permittivité, la théorie de Maxwell-Garnett est adaptée en ajoutant un facteur de dépolarisation dépendant de la forme [26] ou en prenant en compte la contribution des champs rétro-diffusés par les nanofils au champ total à l'extérieur des nanofils [27].

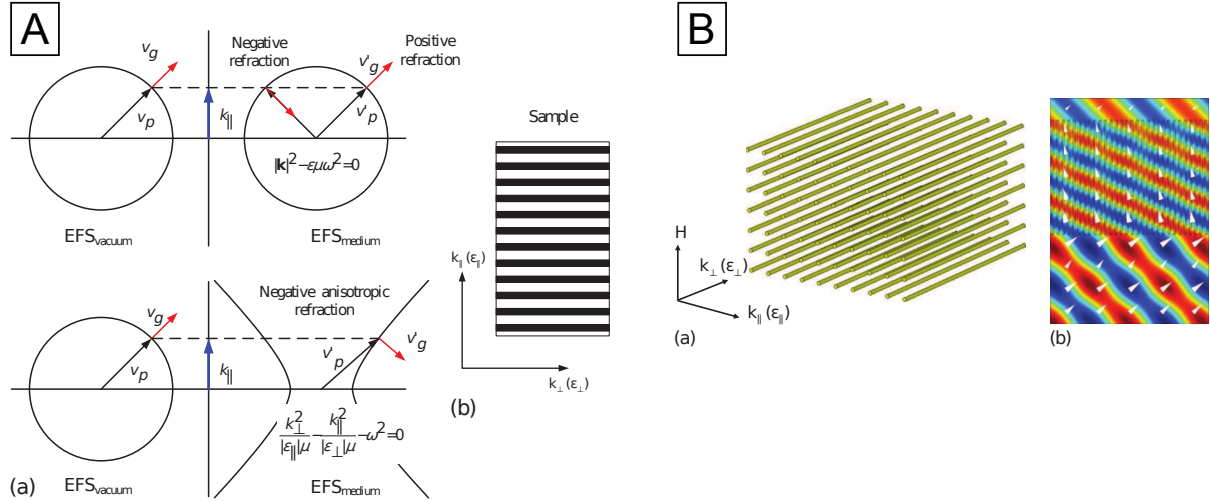
La répartition aléatoire des nanofils et les défauts créés par l'absence de nanofils par endroits (comme le montre la figure 1.3) font toutefois craindre la diffusion de la lumière par ces milieux. La diffusion est finalement l'une des raisons pour lesquelles les théories des milieux effectifs peuvent être inapplicables à des milieux de nanofils disposés aléatoirement et fabriqués par des approches *bottom-up*.

Les applications et propriétés de ces milieux sont diverses. Des milieux homogènes à base de nanofils semiconducteurs peuvent être exploités comme couches anti-reflets [24]. Un phénomène de réfraction négative peut être observé à l'interface entre un milieu composé de nanofils métalliques alignés verticalement et le vide [21–23, 26]. Pour des ondes polarisées dans le plan d'incidence, une relation de dispersion hyperbolique est établie quand la dernière composante du tenseur de permittivité (suivant  $z$ ) est négative. Ces milieux, appelés hyperboliques ou indéfinis [28], sont cités pour des applications de focalisation et imagerie sub-longueur d'onde. Comme illustré sur la figure 1.4, le flux d'énergie est réfracté négativement, c'est-à-dire du même côté de la normale. La direction est donnée par celle du vecteur de Poynting perpendiculaire à la surface isofréquence et le sens est déterminé en accord avec le signe de  $d\omega/d\mathbf{k}$  dans toutes les directions de propagation  $\mathbf{k}$  (une relation hyperbolique n'est donc pas une condition suffisante pour observer un phénomène de réfraction négative, le signe de  $d\omega/d\mathbf{k}$  à  $\omega_0$  devant être déduit de la relation de dispersion pour des valeurs voisines de  $\omega_0$  [21, 29]).<sup>3</sup> Ainsi, l'exemple des matériaux indéfinis montre que la réfraction négative n'est pas nécessairement associée à des matériaux main-gauche à indice négatif. Cet exemple illustre encore une fois la nécessité de connaître les relations de dispersion pour expliciter parfaitement les propriétés de propagation des ondes dans les matériaux artificiels.

Exploiter la réfraction négative des milieux hyperboliques permet de concevoir des systèmes d'imagerie avec une résolution sub-longueur d'onde [27] en exploitant le phénomène de réfraction négative. Cependant, contrairement aux métamatériaux à indice négatif, le phénomène de réfraction négative pour les métamatériaux indéfinis non magnétiques ne repose pas sur un mécanisme résonant [28]. Cela permet de réduire les pertes ohmiques dues au métal dans le visible : l'atténuation à travers une mono-couche du matériau main-gauche considéré par Dolling *et al.* [30] est trois ordres de grandeur plus importante que l'atténuation (pour une épaisseur équivalente) à travers le matériau hyperbolique de la référence [22] à 780 nm.

3. Dans le manuscrit, la direction du vecteur de Poynting et celle de la vitesse de groupe (cf figure 1.4) désignent indifféremment la direction du flux d'énergie. Cependant, la vitesse de groupe  $\mathbf{v}_g$  est définie par  $\mathbf{v}_g = \nabla_{\mathbf{k}}\omega(\mathbf{k})$ . Le flux d'énergie est donc par définition perpendiculaire à la surface isofréquence et va dans le sens où la surface isofréquence s'étend quand la fréquence  $\omega$  augmente, cf le signe de  $d\omega/d\mathbf{k} > 0$  pour une direction  $\mathbf{k}$  fixée.





**FIGURE 1.4** – Phénomène de réfraction négative à l’interface entre un milieu isotrope et un milieu anisotrope homogène composé de nanofils métalliques dans une matrice diélectrique (figures reproduites à partir de la référence [21]).

**A** Propriétés de propagation des ondes. (a) Réfraction positive de la vitesse de phase et de la vitesse de groupe entre deux milieux isotropes représentés par des surfaces isofréquences circulaires; (b) réfraction négative de la vitesse de groupe (flux d’énergie) due une dispersion hyperbolique. **B** Réfraction d’une onde plane sur un milieu 3D constitué de nanofils métalliques. (a) Une onde polarisée TM a un champ magnétique perpendiculaire aux nanofils; (b) distribution du champ magnétique transverse réfracté dans le milieu 3D de nanofils sous incidence oblique (les flèches blanches indiquent la direction du flux d’énergie qui subit une réfraction négative).

### 1.3 Homogénéisation de structures périodiques dans le domaine sub-longueur d’onde

Plusieurs stratégies peuvent être envisagées pour homogénéiser des matériaux périodiques dans le domaine sub-longueur d’onde. La principale difficulté est de tenir compte de la dispersion spatiale caractérisant ce domaine.

#### 1.3.1 Développement de l’indice effectif en série de Taylor

Pour une structure périodique de période  $\Lambda$ , la limite quasi-statique est déterminée par la condition :  $\Lambda/\lambda \rightarrow 0$ . Cette limite correspond à la borne supérieure du domaine sub-longueur d’onde; la borne inférieure est la longueur d’onde de Rayleigh  $\lambda_R$  donnée par la formule du réseau, et coïncide avec l’apparition d’un ordre diffracté<sup>4</sup>. Mais avant même l’apparition d’ordre diffractés, on conçoit que l’approche quasi-statique ne décrit plus bien le système. Une meilleure approche pour déterminer un indice effectif  $n_{\text{eff}}$  consiste à l’écrire sous la forme d’un développement de Taylor en  $\Lambda/\lambda$  :

$$n_{\text{eff}}(\lambda) = n^{(0)} + n^{(2)}(\Lambda/\lambda)^2 + n^{(4)}(\Lambda/\lambda)^4 \dots \quad (1.7)$$

Pour des réseaux 1D, des expressions analytiques des permittivités effectives ont été obtenues sous cette forme pour la polarisation TE jusqu’à l’ordre 2 et pour la polarisation TM jusqu’à l’ordre 4, pour tout angle d’incidence [31]. Cependant, les surfaces isofréquences dévient du cercle et de l’ellipse attendus

4. Strictement, c’est la condition d’apparition d’un ordre diffracté est  $\lambda < 2\Lambda$ , en incidence rasante.

à partir du terme d'ordre 4 pour la polarisation TE et du terme d'ordre 2 pour la polarisation TM. Ces déviations mettent en évidence le phénomène de dispersion spatiale caractéristique du domaine sub-longueur.

### 1.3.2 La dispersion spatiale

La dispersion spatiale traduit l'influence de courants induits. Un milieu sujet à la dispersion spatiale est appelé de façon équivalente un milieu non-local, faisant référence au fait que ces courants induits dépendent non-localement du champ électrique ou du champ magnétique ; cela signifie que le courant de déplacement en un point  $\mathbf{r}$  dépend du champ électrique en un point voisin  $\mathbf{r}'$ . Les champs créés par ces courants sont définis par les équations de Maxwell, celles-ci devant être complétées par des relations constitutives pour décrire comment les courants sont générés [32]. Il existe deux sources principales de la dispersion spatiale, la première étant le rapport  $\Lambda/\lambda$ , et la seconde les interactions entre les résonateurs (notamment magnétiques). Dans le cas d'une faible dispersion spatiale, la relation constitutive entre la densité de courant de conduction  $\mathbf{j}_c$  et le champ électrique  $\mathbf{E}$  (autrement dit, la conductivité) peut être développée jusqu'à l'ordre 2. Le terme d'ordre 1 pilote le couplage électromagnétique (entre  $\mathbf{E}$  et  $\mathbf{H}$ ) et conduit à des relations constitutives bi-anisotropes  $\mathbf{D}(\mathbf{E}, \mathbf{H})$  et  $\mathbf{B}(\mathbf{H}, \mathbf{E})$  ; le terme d'ordre 2 mène à des relations constitutives entre  $(\mathbf{D}, \mathbf{E})$  et  $(\mathbf{B}, \mathbf{H})$  anisotropes mais non-dispersives spatialement [33]. Pour de tels milieux non-dispersifs, les solutions des équations de Maxwell peuvent être facilement déterminées en utilisant des conditions aux limites standard (continuité des composantes tangentielles de  $\mathbf{E}$  et  $\mathbf{H}$  et des composantes normales de  $\mathbf{D}$  et  $\mathbf{B}$ ). Les solutions sont plus difficilement accessibles pour les milieux avec des relations constitutives bi-anisotropes, des conditions aux limites supplémentaires étant requises [34]. Finalement, pour une faible dispersion spatiale, ces relations constitutives peuvent être mises sous la forme :

$$\mathbf{D}(\mathbf{r}, \omega) = \epsilon_0 \epsilon(\omega) \mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega), \quad (1.8)$$

$$\mathbf{B}(\mathbf{r}, \omega) = \mu_0 \mu(\omega) \mathbf{H}(\mathbf{r}, \omega), \quad (1.9)$$

où  $\epsilon$  et  $\mu$  sont des tenseurs de second ordre. Ainsi, des nanomatériaux composites présentant une faible dispersion spatiale peuvent être considérés comme des milieux effectifs homogènes anisotropes possédant des propriétés magnétiques, quand bien même les matériaux constitutifs sont non-magnétiques (notamment les métaux avec  $\mu_{\text{métal}} = 1$ ). A ce stade, il est très important de remarquer que les propriétés non conventionnelles intéressantes des métamatériaux, comme par exemple la chiralité ou les propriétés magnétiques, sont dues à ces courants induits. En effet, le couplage électromagnétique est piloté par le terme de premier ordre de la conductivité et donc disparaît avec ce dernier ; les phénomènes dus aux propriétés magnétiques tels que la réfraction négative [35] ou les modes à permittivité nulle [36–38] ne sont alors plus observables. De même, ce terme de premier ordre est toujours absent pour des milieux non chiraux.

Si les tenseurs  $\epsilon$  et  $\mu$  dépendent du vecteur d'onde  $\mathbf{k}$ , l'hypothèse de faible dispersion spatiale est remise en question, et l'homogénéisation n'a alors pas de sens [33, 39]. Un indice effectif unique peut être attribué à un milieu effectif si sa surface isofréquence ne dépend pas de  $\mathbf{k}$ . De même, l'hypothèse de faible

dispersion spatiale pour des matériaux effectifs anisotropes peut être vérifiée en comparant les surfaces iso-fréquences à celles attendues pour des matériaux uniaxes ou biaxes. La dépendance suivant  $\mathbf{k}$  des paramètres effectifs a des conséquences sur la conception des métamatériaux. Par exemple la réalisation de métamatériaux à indice négatif pour l'application de super-lentille [40] nécessite de trouver un compromis entre l'homogénéisation et l'existence de propriétés magnétiques. Pour une faible dispersion spatiale un indice effectif  $n_{eff} = -1$  à tous les angles d'incidence pourra être défini ; en revanche il sera difficile de le réaliser en pratique car les résonances (plasmoniques) à l'origine des propriétés magnétiques sont alors de faibles intensités et tendent à disparaître [33].

Dans le cas d'une dispersion spatiale non négligeable, les paramètres effectifs dépendent du vecteur d'onde  $\mathbf{k}$  et ne sont alors pas propres au milieu, mais décrivent plutôt l'interaction d'un champ électromagnétique avec celui-ci : le recours à des paramètres effectifs de propagation est alors nécessaire.

### 1.3.3 Cas des structures périodiques

#### Modes de Bloch

Les métamatériaux optiques présentant des propriétés magnétiques sont typiquement composés d'unités élémentaires distribuées périodiquement dans les trois directions de l'espace. Ces unités élémentaires peuvent être faites par exemple de SRRs, d'empilements métal-diélectrique ou de *fishnets* [28], ces dernières permettant d'obtenir un comportement main-gauche avec des pertes ohmiques réduites [41]. Les modes électromagnétiques associés à ces structures périodiques sont les modes de Bloch<sup>5</sup>. Le matériau peut être périodique suivant une, deux ou les trois directions ; au lieu d'une seule période  $\Lambda$  on pourra définir au besoin les périodes  $\Lambda_x$ ,  $\Lambda_y$  et  $\Lambda_z$ . Chaque mode de Bloch d'ordre  $m$  est décrit comme une superposition d'ondes planes dont les amplitudes sont périodiques ; la résultante s'écrit :

$$\mathbf{E}_m(\mathbf{r}, t) = e^{i\mathbf{k}_m \cdot \mathbf{r}} \sum_{\mathbf{G}} \mathbf{E}_{\mathbf{G},m} e^{i\mathbf{G} \cdot \mathbf{r}} e^{-i\omega t}. \quad (1.10)$$

$\mathbf{G}$  définit l'espace réciproque qui comprend l'ensemble des vecteurs réseaux. Chaque mode est caractérisé par la composante longitudinale  $k_{z,m}$  de son vecteur d'onde  $\mathbf{k}_m$ . Un indice de Bloch  $n_{B,m}$  peut être également introduit pour chacun des modes, comme par exemple dans le cas d'un matériau unidimensionnel de période  $\Lambda_x$  suivant  $x$  :

$$\mathbf{E}_m(\mathbf{r}, t) = e^{i\frac{2\pi}{\Lambda} n_{B,m} z} \sum_p \mathbf{E}_{p,m} e^{i(k_x + p\frac{2\pi}{\Lambda_x})x} e^{-i\omega t}. \quad (1.11)$$

#### Approximation du mode fondamental

Trois conditions doivent être réunies pour considérer un matériau effectif homogène [25, 42, 43] :

---

5. La littérature fait la distinction entre les modes de Bloch se propageant dans le plan de périodicité ( $k_z = 0$ ) et ceux se propageant perpendiculairement à ce plan ( $k_z \neq 0$ ). Cela permet de distinguer les cristaux photoniques pour lesquels des bandes interdites existent, des métamatériaux périodiques pour lesquels ces bandes tendent à disparaître à mesure que  $k_z$  augmente.

- (i) Seul l'ordre 0 se propage dans le milieu incident d'indice  $n_1$  et dans le milieu de sortie d'indice  $n_2$ , les autres ordres étant évanescents. Cette première condition est déduite de la formule du réseau, l'inéquation suivante devant être satisfaite :

$$\frac{\Lambda}{\lambda} < \frac{1}{\max(n_1, n_2) + n_1 \sin \theta}, \quad (1.12)$$

avec  $\theta$  l'angle d'incidence. Cela définit une valeur de coupure correspondant à une anomalie de Rayleigh :  $\Lambda = \Lambda_c$  coïncide avec un ordre évanescents devenant propagatif. Cette valeur  $\Lambda_c$  est indépendante de la géométrie du matériau périodique, mais pas des conditions d'illumination ( $\Lambda_c = \frac{\lambda}{\max(n_1, n_2)}$  à incidence normale).

- (ii) Seul un mode de Bloch se propage dans le milieu composite ; il s'agit la plupart du temps du mode fondamental donné par l'équation 1.11 avec  $m = 0$ . Les autres modes de Bloch, évanescents, se caractérisent par des constantes de propagation  $k_{z,m}$  (avec  $m > 0$ ) complexes ou de partie imaginaire grande devant celle du mode fondamental. Cela introduit une seconde coupure structurelle  $\Lambda_s$  qui dépend à la fois de la géométrie du réseau et de l'angle d'incidence contrairement à  $\Lambda_c$ . Pour un réseau carré périodique bi-dimensionnel air/diélectrique d'indice  $n_d$ , il a été démontré analytiquement que  $\Lambda_s = \lambda/n_d$  à incidence normale, quelle que soit la taille des structures [42].
- (iii) L'influence des modes évanescents est négligeable. Cette condition n'est pas valable dans le cas de matériaux artificiels périodiques 1D ou 2D de faible épaisseur. En effet, les modes évanescents peuvent contribuer au transport de l'énergie d'une interface à une autre par effet tunnel et créer des interactions multi-modes aux interfaces en se couplant avec le mode fondamental. Pour des matériaux diélectriques invariants suivant  $z$ , l'influence des modes évanescents peut être négligée si l'épaisseur est supérieure à un quart de la longueur d'onde. A contrario, un métamatériau diélectrique de très faible épaisseur est semblable à une couche de matériau isotrope avec  $n_o = n_{eo} = \sqrt{\epsilon} > \frac{1}{2}$  [44]. Pour un métamatériau 3D de type *fishnet*, l'influence des modes évanescents peut être atténuée en augmentant la période  $\Lambda_z$  [45]. La transition d'une lame mince à un métamatériau massif composé de SRRs et de fils métalliques se traduit ainsi par le passage d'un indice effectif négatif à un indice positif [46]. En fait, un indice effectif qui varie avec l'épaisseur ou le nombre de périodes suivant  $z$  ne peut pas correspondre à un matériau effectif homogène du fait de l'influence des modes de Bloch de plus hautes énergies. Cela introduit une contrainte technologique forte, l'empilement multi-couche devant présenter un nombre suffisant de couches.

L'approximation du mode de Bloch fondamental est introduite si ces trois conditions sont remplies [45, 47]. La propagation des ondes dans les matériaux artificiels et les réflexions/transmissions aux interfaces sont alors complètement caractérisées par deux paramètres effectifs associés au mode de Bloch le moins atténué : les composantes longitudinales du vecteur d'onde et de l'impédance de ce mode [45].

### 1.3.4 Conception de propriétés optiques et caractéristiques de propagation

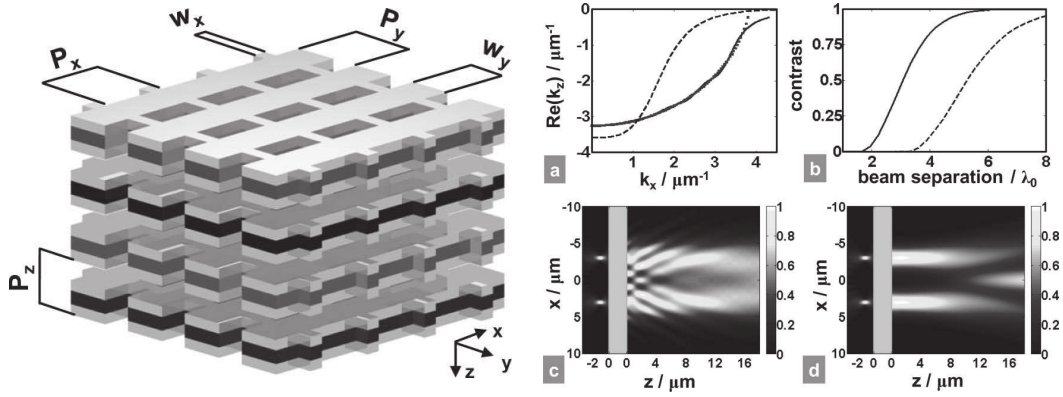
Dans le cadre de l'approximation du mode de Bloch fondamental il est préférable de concevoir des propriétés optiques en imposant des souhaits non pas sur des paramètres effectifs du milieu, mais sur les paramètres effectifs de propagation. Ainsi, une approche d'ordinaire appliquée à des cristaux photoniques [48] a récemment été utilisée pour des métamatériaux [29, 49, 50]. Elle consiste à compenser les effets de la dispersion spatiale pour obtenir la courbe isofréquence souhaitée. La dispersion spatiale est une particularité qui est souvent recherchée dans le cas des cristaux photoniques, mais qui peut être nuisible pour certaines applications des métamatériaux. L'avantage de cette démarche basée sur la forme souhaitée de la surface isofréquence est de permettre de s'affranchir du problème de l'homogénéisation et des effets non-locaux pour les métamatériaux. Connaissant la surface isofréquence  $\omega = \omega(k_x, k_y, k_z) = \text{const.}$ , les dérivées  $\frac{\partial k_z}{\partial k_{||}}$  et  $\frac{\partial^2 k_z}{\partial k_{||}^2}$  contrôlent respectivement la réfraction et la diffraction. Paul *et al.* ont appliqué cette approche pour un métamatériau de type *fishnet* [49] (cf figure 1.5). Une surface isofréquence sphérique est nécessaire pour concevoir un indice effectif négatif pour les applications d'imagerie sous la limite de diffraction ; si la composante longitudinale du vecteur d'onde ne varie pas avec la composante transversale, une propagation sans diffraction peut être créée, avec  $\frac{\partial^2 k_z}{\partial k_{||}^2} \sim 0$ . L'optimisation de ces métamatériaux est possible en changeant les paramètres de la structure *fishnet* (paramètres géométriques et constantes diélectriques). La structure initiale n'est ni uniaxe ni biaxe à cause de la dispersion spatiale, tandis que la structure optimisée est isotrope (cf figure 1.5 (a)). Les performances de cette lentille sont ainsi améliorées : les images de deux faisceaux gaussiens initialement séparés dans le plan focal image se superposent dans le plan focal objet pour la structure initiale, et sont au contraire résolues dans le cas de la structure optimisée pour (cf figures 1.5 (b), (c), (d)).

## 1.4 Algorithme d'extraction de paramètres effectifs à partir de coefficients complexes de transmission et de réflexion d'une couche de métamatériau

J'ai montré que l'approximation du mode de Bloch fondamental est un cadre qui permet de traiter le problème de l'homogénéisation et d'avoir une approche raisonnée pour la conception de propriétés optiques et caractéristiques de propagation. Les paramètres effectifs des métamatériaux peuvent toutefois être introduits par d'autres approches théoriques, comme par exemple :

- le recours aux moyennes spatiales de champs électromagnétiques locaux [51],
- l'approche multipolaire, qui repose sur la prise en compte des moments dipolaires (voire quadripolaires) électriques et magnétiques créés par des charges oscillant dans le matériau [52–54],
- l'étude des réflexion et transmission sur une seule interface [45, 55].

Un des buts visés par la définition d'indices effectifs est de pouvoir calculer les amplitudes complexes de réflexion et transmission d'un dipotre ou d'une couche mince. Il est donc naturel d'accéder aux paramètres effectifs en inversant ces amplitudes complexes. Cette méthode a été introduite par Nicholson, Ross et Weir [56, 57], puis appliquée par Smith et Soukoulis à incidence normale pour des nanofils



**FIGURE 1.5** – Figures reproduites à partir de la référence [49]. A gauche : schéma d'un métamatériau fishnet composé d'empilements de quatre couches fonctionnelles nanostructurées métal/diélectrique/métal. Au cours de l'optimisation de la structure, les paramètres  $P_x$ ,  $P_y$ ,  $P_z$ ,  $w_x$  et  $w_y$  sont inchangés ; les paramètres modifiés sont les épaisseurs de diélectrique ( $\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x}\text{As}$ ) et de métal (argent) pour chacune des couches fonctionnelles, ainsi que la permittivité du diélectrique via le paramètre stœchiométrique  $x$ . A droite : (a) partie réelle de la composante longitudinale du vecteur d'onde  $k_z$  en fonction de la composante transversale  $k_x$ , pour la structure fishnet de départ (ligne discontinue) et la structure optimisée (ligne en trait plein), superposée avec la courbe circulaire idéale (trait pointillé). (b) Contraste dans le plan image associé aux images de deux faisceaux gaussiens en fonction de la distance qui les séparent initialement dans le plan objet, pour la structure initiale (ligne discontinue) et pour la structure optimisée (ligne en trait plein). Pour une même distance initiale de  $6\mu\text{m}$  entre les faisceaux gaussiens, (c) formation des images à travers la lentille pour la structure de départ et (d) pour la structure optimisée.

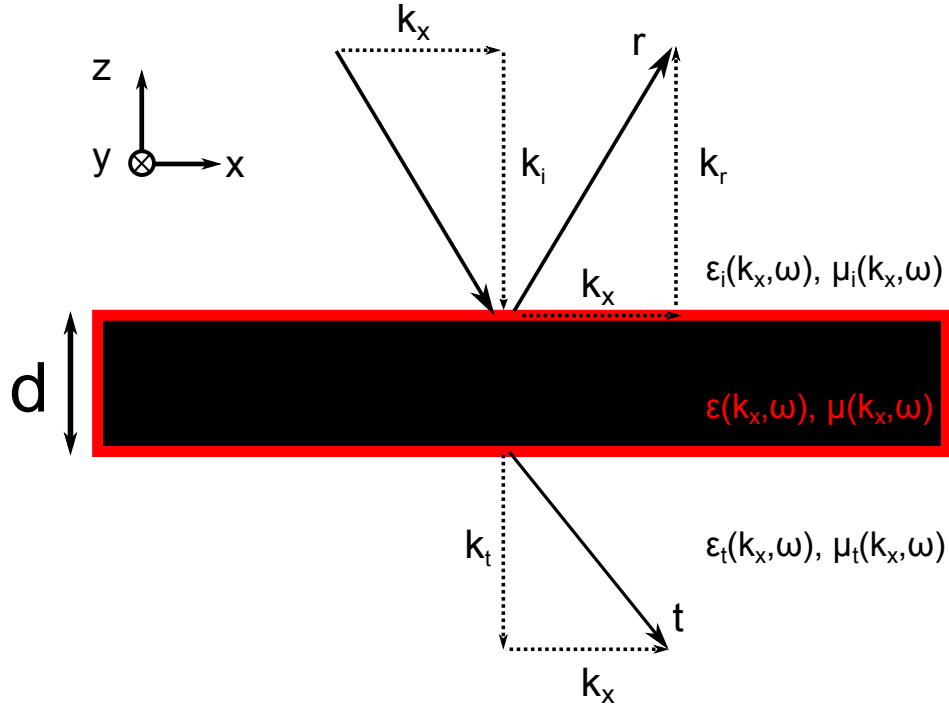
métalliques et des SRRs [58], et récemment généralisée par Menzel *et al.* à incidence oblique pour une structure *fishnet* [59]. Il est possible d'effectuer l'inversion à partir de coefficients  $r$  et  $t$  obtenus expérimentalement ou par le calcul ; les méthodes numériques et analytiques sont diverses : les coefficients peuvent être calculés à partir d'un formalisme de matrices de transfert [60] ou un formalisme de matrices de *scattering* (par exemple, le code de calcul MULTICS présenté dans le chapitre 3 est basé sur un formalisme de matrices  $S$ ). Dans le cadre de l'approximation du mode de Bloch fondamental, les réflexion et transmission de la couche de métamatériau sont calculés en appliquant des conditions aux limites standards au lieu de conditions périodiques. Cette méthode est également applicable à des matériaux homogènes naturels, notamment aux diélectriques. Dans les deux cas, le but est d'extraire la constante de propagation  $k_z$  et l'impédance  $Z$  caractérisant l'onde plane unique ou par analogie l'unique mode de Bloch propagatif supporté par le matériau.

Soient  $r$  et  $t$  les amplitudes complexes de réflexion et de transmission d'une couche d'épaisseur  $d$  homogène éclairée sous incidence oblique, comme l'illustre la figure 1.6.

Dans les milieux extérieurs, les composantes des vecteurs d'onde transverses au plan de la couche valent :

$$k_i = \sqrt{\frac{\omega^2}{c^2} \epsilon_i(k_x, \omega) \mu_i(k_x, \omega) - k_x^2}, \quad (1.13)$$

$$k_t = \sqrt{\frac{\omega^2}{c^2} \epsilon_t(k_x, \omega) \mu_t(k_x, \omega) - k_x^2}. \quad (1.14)$$



**FIGURE 1.6** – Schéma de la couche de (méta)matériau homogène d'épaisseur  $d$  et définition des composantes des vecteurs d'onde.

D'après les références [58, 59], la constante de propagation  $k_z$  est extraite selon la formule :

$$k_z d = \pm \arccos \left\{ \frac{k_i(1 - r^2) + k_t(t/A)^2}{(t/A)[k_i(1 - r) + k_t(1 + r)]} \right\} + 2p\pi, p \in \mathbb{Z} \quad (1.15)$$

avec  $A = 1$  pour la polarisation  $TE$  et  $A = \sqrt{\epsilon_i \mu_t / \epsilon_t \mu_i}$  pour la polarisation  $TM$ . Une impédance généralisée  $\xi$  est aussi extraite :

$$\xi(k_x, \omega) = \pm \sqrt{\frac{k_i^2(r - 1)^2 - k_t^2(t/A)^2}{(r + 1)^2 - (t/A)^2}} \quad (1.16)$$

Pour une onde se propageant dans le sens des  $z$  croissants, le signe de  $k_z$  est choisi de façon ce que sa partie imaginaire soit  $\geq 0$  (convention  $e^{-i\omega t}$ ) pour assurer une décroissance exponentielle de l'onde. De plus,  $\phi = k_z d$ , le déphasage associé à la propagation de l'onde à travers la couche d'épaisseur  $d$ , est nul quand  $\lambda \rightarrow \infty$ , ce qui n'est pas toujours accessible en pratique, donc  $p$  vaut alors 0 ; le nombre de branche  $p$  est ensuite ajusté pour assurer la continuité de  $\phi$  quand  $\lambda$  diminue.<sup>6</sup> A incidence normale,  $\xi$  est reliée à l'impédance  $Z$  :

$$TE : \xi(0, \omega) = \frac{1}{Z} \frac{\omega}{c} \quad \text{et} \quad TM : \xi(0, \omega) = Z \frac{\omega}{c}. \quad (1.17)$$

6. Dans le cas où  $k_i = k_t = \sqrt{\frac{\omega^2}{c^2} - k_x^2}$ , c'est-à-dire dans le cas d'une couche  $d$  suspendue dans l'air, j'ai introduit en plus  $\sin(k_z d) = \frac{2k_i \xi r}{i(\xi^2 - k_i^2)t}$  pour faciliter l'extraction de  $\phi$  :  $k_z d = \pm \arccos \left( \frac{1 - r^2 + t^2}{2t} \right) + 2p\pi$ , si  $\sin(k_z d) > 0$  et  $k_z d = 2\pi - \left( \pm \arccos \left( \frac{1 - r^2 + t^2}{2t} \right) \right) + 2p\pi$ , si  $\sin(k_z d) < 0$ .

Pour un milieu passif, la condition  $\Re(Z) > 0$  permet ainsi de déterminer le signe de  $\xi$  à incidence normale. Par ailleurs, comme l'impédance généralisée  $\xi$  est définie par :

$$TE : \xi(k_x, \omega) = \frac{k_z(k_x, \omega)}{\mu(k_x, \omega)} \quad \text{et} \quad TM : \xi(k_x, \omega) = \frac{k_z(k_x, \omega)}{\epsilon(k_x, \omega)} \quad (1.18)$$

pour les deux polarisations  $TE$  et  $TM$ , la continuité de  $\epsilon$ ,  $\mu$  et  $k_x$  permet de justifier le signe de  $\xi(k_x, \omega)$  [61]. On extrait donc ensuite  $\mu$  puis  $\epsilon$  pour la polarisation  $TE$ , et  $\epsilon$  puis  $\mu$  pour la polarisation  $TM$  en appliquant les formules suivantes :

$$TE : \frac{\omega^2}{c^2} \epsilon(k_x, \omega) = \frac{k_x^2 + k_z^2(k_x, \omega)}{\mu(k_x, \omega)} \quad \text{et} \quad TM : \frac{\omega^2}{c^2} \mu(k_x, \omega) = \frac{k_x^2 + k_z^2(k_x, \omega)}{\epsilon(k_x, \omega)}. \quad (1.19)$$

Un indice effective unique peut éventuellement être écrit si la dépendance en  $k_x$  n'est pas observée :

$$n(k_x, \omega) = \pm \frac{\sqrt{k_x^2 + k_z^2(k_x, \omega)}}{\omega/c} \quad (1.20)$$

Cette dernière étape n'est pas nécessaire car la propagation est déjà entièrement décrite par  $k_z$ ,  $\epsilon(k_x, \omega)$  et  $\mu(k_x, \omega)$ , l'impédance  $Z$  est donnée par :

$$Z(k_x, \omega) = \pm \sqrt{\frac{\mu(k_x, \omega)}{\epsilon(k_x, \omega)}}, \quad (1.21)$$

toujours en imposant  $\Re(Z) > 0$ .

Dans le cas d'un matériau isotrope, par exemple un diélectrique, l'indice sera simplement calculé par :  $n = k_z c / \omega$ .

Cet algorithme d'inversion pourra servir à valider l'approximation du mode de Bloch fondamental, les coefficients complexes  $r$  et  $t$  de départ pouvant être obtenus par le calcul ou expérimentalement. Si l'approximation est vérifiée,  $k_z$  et  $Z$  correspondent exactement à la constante de propagation et l'impédance du mode de Bloch.

## 1.5 Conclusion

L'homogénéisation de nanomatériaux optiques est à traiter différemment suivant que l'on est en limite quasi-statique ( $\lambda \gg \Lambda$ ) ou dans le domaine sub-longueur d'onde ( $\lambda \sim \Lambda$ ). En limite quasi-statique, des expressions analytiques pour les paramètres effectifs existent et les matériaux composites peuvent être considérés comme homogènes. En revanche, les contraintes technologiques et la nécessité d'avoir des résonances magnéto-électriques pour créer des propriétés optiques non conventionnelles nous limitent au domaine sub-longueur d'onde. Ce régime est marqué par le phénomène de dispersion spatiale qui se manifeste par des paramètres effectifs dépendant de la composante tangentielle  $k_x$  du vecteur d'onde. Il est alors préférable d'introduire des paramètres effectifs décrivant la propagation des



ondes dans le milieu et non pas le milieu lui-même. Pour un matériau périodique et dans le cadre de l'approximation du mode fondamental, ces paramètres effectifs de propagation sont l'impédance et la constante de propagation du mode de Bloch le moins atténué.

Dans ces conditions, les coefficients de réflexion et de transmission complexes  $r$  et  $t$  d'une couche de matériau composite d'épaisseur finie ont une expression analogue à ceux d'une onde plane réfléchie et transmise par une couche de matériau homogène. J'ai finalement présenté un algorithme d'inversion permettant d'extraire les paramètres effectifs (constante de propagation et impédance) à partir des coefficients  $r$  et  $t$ , à toute incidence oblique, permettant ainsi de mettre en évidence la dispersion spatiale. Finalement, comparer les paramètres ainsi extraits à ceux du mode de Bloch fondamental permet de valider l'approximation du mode Bloch de fondamental.

L'inversion peut être effectuée à partir de coefficients complexes obtenus par le calcul ou expérimentalement. Dans le chapitre 2 suivant, je parcours différentes techniques expérimentales de caractérisation de nanomatériaux optiques et distingue celles permettant de déterminer  $r$  et  $t$  complexes ; une méthode particulière de mesure de  $r$  et  $t$  complexes sera ainsi introduite dans le chapitre 3 et appliquée dans le chapitre 4.

## Références

- [1] C. Koechlin, P. Bouchon, F. Pardo, J.-L. Pelouard, and R. Haïdar, "Analytical description of sub-wavelength plasmonic mim resonators and of their combination," *Optics express* **21**, 7025–7032 (2013).
- [2] G. W. Milton, *The theory of composites*, vol. 6 (Cambridge University Press, 2002).
- [3] G. Bouchitte and R. Petit, "Homogenization techniques as applied in the electromagnetic theory of gratings," *Electromagnetics* **5**, 17–36 (1985).
- [4] R. McPhedran, L. Botten, M. Craig, M. Nevière, and D. Maystre, "Lossy lamellar gratings in the quasistatic limit," *Optica Acta : International Journal of Optics* **29**, 289–312 (1982).
- [5] V. G. Veselago, "The electrodynamics of substances with simultaneous negative values of  $\epsilon$  and  $\mu$ ," *Physics-Uspekhi* **10**, 509–514 (1968).
- [6] R. A. Shelby, D. R. Smith, and S. Schultz, "Experimental verification of a negative index of refraction," *science* **292**, 77–79 (2001).
- [7] J. Zhou, T. Koschny, M. Kafesaki, E. N. Economou, J. B. Pendry, and C. M. Soukoulis, "Saturation of the magnetic response of split-ring resonators at optical frequencies," *Phys. Rev. Lett.* **95**, 223902 (2005).
- [8] A. Ishikawa, T. Tanaka, and S. Kawata, "Negative magnetic permeability in the visible light region," *Phys. Rev. Lett.* **95**, 237401 (2005).
- [9] M. Born and E. Wolf, *Principles of optics : electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light* (CUP Archive, 1999).
- [10] L. Hu and S. T. Chui, "Characteristics of electromagnetic wave propagation in uniaxially anisotropic left-handed materials," *Phys. Rev. B* **66**, 085108 (2002).

- [11] H. Kikuta, Y. Ohira, and K. Iwata, "Achromatic quarter-wave plates using the dispersion of form birefringence," *Applied optics* **36**, 1566–1572 (1997).
- [12] P. C. Deguzman and G. P. Nordin, "Stacked subwavelength gratings as circular polarization filters," *Applied optics* **40**, 5731–5737 (2001).
- [13] L. H. Cescato, E. Gluch, and N. Streibl, "Holographic quarterwave plates," *Applied optics* **29**, 3286–3290 (1990).
- [14] L. Pajewski, R. Borghi, G. Schettini, F. Frezza, and M. Santarsiero, "Design of a binary grating with subwavelength features that acts as a polarizing beam splitter," *Applied optics* **40**, 5898–5905 (2001).
- [15] D. Delbeke, R. Baets, and P. Muys, "Polarization-selective beam splitter based on a highly efficient simple binary diffraction grating," *Applied optics* **43**, 6157–6165 (2004).
- [16] Y. Kanamori, K. Hane, H. Sai, and H. Yugami, "100 nm period silicon antireflection structures fabricated using a porous alumina membrane mask," *Applied Physics Letters* **78**, 142–143 (2001).
- [17] A. H. Sihvola, *Electromagnetic mixing formulas and applications*, 47 (Iet, 1999).
- [18] L. Rayleigh, "On the influence of obstacles arranged in rectangular order upon the properties of a medium," *Philosophical Magazine Series 5* **34**, 481–502 (1892).
- [19] J. M. Garnett, "Colours in metal glasses, in metallic films, and in metallic solutions. ii," *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical or Physical Character* pp. 237–288 (1906).
- [20] S. L. Diedenhofen and J. G. Rivas, "Modified reflection in birefringent layers of core-shell semiconductor nanowires," *Semiconductor Science and Technology* **25**, 024008 (2010).
- [21] A. Fang, T. Koschny, and C. M. Soukoulis, "Optical anisotropic metamaterials : Negative refraction and focusing," *Phys. Rev. B* **79**, 245127 (2009).
- [22] J. Yao, Z. Liu, Y. Liu, Y. Wang, C. Sun, G. Bartal, A. M. Stacy, and X. Zhang, "Optical negative refraction in bulk metamaterials of nanowires," *Science* **321**, 930 (2008).
- [23] J. Yao, Y. Wang, K.-T. Tsai, Z. Liu, X. Yin, G. Bartal, A. M. Stacy, Y.-L. Wang, and X. Zhang, "Design, fabrication and characterization of indefinite metamaterials of nanowires," *Philosophical Transactions of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences* **369**, 3434–3446 (2011).
- [24] S. L. Diedenhofen, G. Vecchi, R. E. Algra, A. Hartsuiker, O. L. Muskens, G. Immink, E. P. A. M. Bakkers, W. L. Vos, and J. G. Rivas, "Broad-band and omnidirectional antireflection coatings based on semiconductor nanorods," *Advanced Materials* **21**, 973–978 (2009).
- [25] P. Lalanne and M. Hutley, "The optical properties of artificial media structured at a subwavelength scale," (2003).
- [26] Y. Liu, G. Bartal, and X. Zhang, "All-angle negative refraction and imaging in a bulk medium made of metallic nanowires in the visible region," *Opt. Express* **16**, 15439–15448 (2008).
- [27] J. Elser, R. Wangberg, V. A. Podolskiy, and E. E. Narimanov, "Nanowire metamaterials with extreme optical anisotropy," *Applied Physics Letters* **89**, 261102 (2006).

- [28] C. M. Soukoulis and M. Wegener, “Past achievements and future challenges in the development of three-dimensional photonic metamaterials,” *Nature Photonics* **5**, 523–530 (2011).
- [29] E. Verhagen, R. de Waele, L. Kuipers, and A. Polman, “Three-dimensional negative index of refraction at optical frequencies by coupling plasmonic waveguides,” *Phys. Rev. Lett.* **105**, 223901 (2010).
- [30] G. Dolling, M. Wegener, and S. Linden, “Realization of a three-functional-layer negative-index photonic metamaterial,” *Opt. Lett.* **32**, 551–553 (2007).
- [31] P. Lalanne and J.-P. Hugonin, “High-order effective-medium theory of subwavelength gratings in classical mounting : application to volume holograms,” *JOSA A* **15**, 1843–1851 (1998).
- [32] L. Novotny and B. Hecht, *Principles of Nano-Optics*, Principles of Nano-optics (Cambridge University Press, 2006).
- [33] C. Menzel, T. Paul, C. Rockstuhl, T. Pertsch, S. Tretyakov, and F. Lederer, “Validity of effective material parameters for optical fishnet metamaterials,” *Physical Review B* **81**, 035320 (2010).
- [34] V. Agranovich and Y. Gartshtein, “Electrodynamics of metamaterials and the Landau–Lifshitz approach to the magnetic permeability,” *Metamaterials* **3**, 1 – 9 (2009).
- [35] J. B. Pendry, A. J. Holden, D. Robbins, and W. Stewart, “Magnetism from conductors and enhanced nonlinear phenomena,” *Microwave Theory and Techniques, IEEE Transactions on* **47**, 2075–2084 (1999).
- [36] A. Alù, M. G. Silveirinha, A. Salandrino, and N. Engheta, “Epsilon-near-zero metamaterials and electromagnetic sources : Tailoring the radiation phase pattern,” *Physical Review B* **75**, 155410 (2007).
- [37] S. Vassant, A. Archambault, F. Marquier, F. Pardo, U. Gennser, A. Cavanna, J.-L. Pelouard, and J.-J. Greffet, “Epsilon-near-zero mode for active optoelectronic devices,” *Physical review letters* **109**, 237401 (2012).
- [38] R. Maas, J. Parsons, N. Engheta, and A. Polman, “Experimental realization of an epsilon-near-zero metamaterial at visible wavelengths,” *Nature Photonics* **7**, 907–912 (2013).
- [39] A. Căbuz, D. Felbacq, and D. Cassagne, “Spatial dispersion in negative-index composite metamaterials,” *Physical Review A* **77**, 013807 (2008).
- [40] J. B. Pendry, “Negative refraction makes a perfect lens,” *Phys. Rev. Lett.* **85**, 3966–3969 (2000).
- [41] G. Dolling, M. W. Klein, M. Wegener, A. Schädle, B. Kettner, S. Burger, and S. Linden, “Negative beam displacements from negative-index photonic metamaterials,” *Opt. Express* **15**, 14219–14227 (2007).
- [42] C. Sauvan, “Study of light propagation and confinement in nanostructures,” Thèses, Université Paris Sud - Paris XI (2005).
- [43] P. Lalanne, J. P. Hugonin, and P. Chavel, “Optical properties of deep lamellar gratings : A coupled Bloch-mode insight,” *J. Lightwave Technol.* **24**, 2442 (2006).
- [44] P. Lalanne and D. Lemerrier-Lalanne, “Depth dependence of the effective properties of subwavelength gratings,” *JOSA A* **14**, 450–458 (1997).

- [45] T. Paul, C. Menzel, W. Śmigaj, C. Rockstuhl, P. Lalanne, and F. Lederer, “Reflection and transmission of light at periodic layered metamaterial films,” *Physical Review B* **84**, 115142 (2011).
- [46] C. Rockstuhl, T. Paul, F. Lederer, T. Pertsch, T. Zentgraf, T. P. Meyrath, and H. Giessen, “Transition from thin-film to bulk properties of metamaterials,” *Physical Review B* **77**, 035126 (2008).
- [47] C. Rockstuhl, C. Menzel, T. Paul, T. Pertsch, and F. Lederer, “Light propagation in a fishnet metamaterial,” *Physical Review B* **78**, 155102 (2008).
- [48] S. Foteinopoulou and C. Soukoulis, “Negative refraction and left-handed behavior in two-dimensional photonic crystals,” *Physical Review B* **67**, 235107 (2003).
- [49] T. Paul, C. Menzel, C. Rockstuhl, and F. Lederer, “Advanced optical metamaterials,” *Advanced Materials* **22**, 2354–2357 (2010).
- [50] T. Xu, A. Agrawal, M. Abashin, K. J. Chau, and H. J. Lezec, “All-angle negative refraction and active flat lensing of ultraviolet light,” *Nature* **497**, 470–474 (2013).
- [51] D. R. Smith and J. B. Pendry, “Homogenization of metamaterials by field averaging,” *JOSA B* **23**, 391–403 (2006).
- [52] J. Petschulat, C. Menzel, A. Chipouline, C. Rockstuhl, A. Tünnermann, F. Lederer, and T. Pertsch, “Multipole approach to metamaterials,” *Physical Review A* **78**, 043811 (2008).
- [53] K. Vynck, “Optical properties of nanostructured dielectric materials : from photonic crystals to metamaterials,” Theses, Université Montpellier II - Sciences et Techniques du Languedoc (2008).
- [54] K. Vynck, D. Felbacq, E. Centeno, A. Căbuz, D. Cassagne, and B. Guizal, “All-dielectric rod-type metamaterials at optical frequencies,” *Physical review letters* **102**, 133901 (2009).
- [55] J. Yang, C. Sauvan, T. Paul, C. Rockstuhl, F. Lederer, and P. Lalanne, “Retrieving the effective parameters of metamaterials from the single interface scattering problem,” *Applied Physics Letters* **97**, 061102 (2010).
- [56] A. Nicolson and G. Ross, “Measurement of the intrinsic properties of materials by time-domain techniques,” *Instrumentation and Measurement, IEEE Transactions on* **19**, 377–382 (1970).
- [57] W. B. Weir, “Automatic measurement of complex dielectric constant and permeability at microwave frequencies,” *Proceedings of the IEEE* **62**, 33–36 (1974).
- [58] D. R. Smith, S. Schultz, P. Markoš, and C. M. Soukoulis, “Determination of effective permittivity and permeability of metamaterials from reflection and transmission coefficients,” *Phys. Rev. B* **65**, 195104 (2002).
- [59] C. Menzel, C. Rockstuhl, T. Paul, F. Lederer, and T. Pertsch, “Retrieving effective parameters for metamaterials at oblique incidence,” *Phys. Rev. B* **77**, 195328 (2008).
- [60] P. Yeh, *Optical waves in layered media*, Wiley series in pure and applied optics (Wiley, 2005).
- [61] K. Busch, G. Von Freymann, S. Linden, S. Mingaleev, L. Tkeshelashvili, and M. Wegener, “Periodic nanostructures for photonics,” *Physics reports* **444**, 101–202 (2007).

## Chapitre 2

# État de l'art des techniques de caractérisation de nanomatériaux optiques artificiels

J'examine les principales techniques de caractérisation de nanomatériaux optiques artificiels. Pour les métamatériaux, elles consistent le plus souvent à déterminer un indice effectif de réfraction éventuellement négatif en faisant correspondre des mesures et des simulations de transmittances  $|t|^2$  et de réflectances  $|r|^2$ , ou encore à directement mettre en évidence la propriété de réfraction négative. Les méthodes interférométriques constituent une alternative permettant d'accéder aux caractéristiques de propagation des ondes dans les matériaux artificiels. Ces informations sont éventuellement obtenues par l'intermédiaire de coefficients complexes de transmission et de réflexion, comme cela a été montré dans le chapitre 1 ; les méthodes expérimentales pour atteindre ces coefficients complexes sont donc examinées.

### 2.1 Introduction

La discussion sur l'homogénéisation de nanomatériaux artificiels menée dans le chapitre 1 contient des indications pour établir une méthode de caractérisation idéale. En effet, il n'est pas toujours possible de définir un indice effectif unique ; cependant, dans le cas où la propagation des ondes dans le matériau est dominée à la fréquence  $\omega_0$  par un seul mode de constante  $k_z$ , autrement dit dans le cadre de l'approximation du mode fondamental défini dans le chapitre 1, la réponse optique est entièrement décrite par la surface isofréquence, c'est-à-dire la courbe  $k_z = k_z(k_{||}, \omega_0)$ . Les propriétés anisotropes et les effets non locaux influent sur la forme des surfaces isofréquences, ce qui se traduit par des paramètres effectifs dépendant de la composante longitudinale  $k_{||}$  du vecteur d'onde. La méthode de caractérisation doit donc pouvoir s'appliquer à plusieurs angles d'incidence, pour permettre d'accéder à autant de points  $(k_{||}, k_z)$  de la surface isofréquence.

Dans la section 1.4, un algorithme a été introduit, permettant d'extraire la surface isofréquence associée à une lame composée du nanomatériau à caractériser, à partir de coefficients complexes de réflexion et transmission [1, 2]. Déterminer les coefficients complexes suppose d'être capable de mesurer des informations sur la phase des ondes.

Une mesure de ces coefficients complexes à une fréquence  $\omega_0$  unique n'est toutefois pas suffisante. Comme cela a été rappelé dans le chapitre précédent, la direction du flux d'énergie est celle de la vitesse de groupe définie par  $\mathbf{v}_g = \nabla_{\mathbf{k}}\omega(\mathbf{k})$ . Ainsi, pour lever l'ambiguïté sur la réfraction négative du

flux d'énergie à une fréquence  $\omega_0$ , il est nécessaire de ne pas restreindre la mesure des coefficients complexes à cette seule fréquence : la plage de fréquences doit être élargie avec un pas  $\Delta\omega \ll \omega_0$ , afin de pouvoir calculer les dérivées liées à la définition de la vitesse de groupe  $\mathbf{v}_g$ . D'autre part, une large plage de fréquences est nécessaire pour ajuster le nombre de branches  $p$  introduit dans l'équation 1.15, étant donné que  $p$  est nul quand la longueur d'onde  $\lambda$  est grande devant l'épaisseur de la lame et croît quand  $\lambda$  diminue.

Finalement, la méthode de caractérisation idéale doit permettre de mesurer des informations sur la phase des ondes, et plus spécifiquement d'obtenir les coefficients complexes de transmission et de réflexion, en incidence oblique et sur une large plage de longueurs d'onde. Dans chacune des techniques de caractérisation de nanomatériaux artificiels examinées, je rechercherai les critères énoncés. En dernier lieu, la possibilité de valider l'approximation du mode fondamental sera également étudiée.

## 2.2 Recherche de correspondance entre des mesures expérimentales d'intensités et des simulations numériques

La détermination expérimentale des informations de phase est un défi difficile à relever qui nécessite des montages optiques ou des solutions expérimentales spécifiques. L'alternative à la mesure de coefficients complexes de réflexion et de transmission  $r$  et  $t$  consiste alors à combiner des résultats expérimentaux et des simulations numériques, ces dernières étant le plus souvent effectuées avec la méthode modale de Fourier ou la méthode FDTD (en anglais *Finite-Difference Time-Domain*).

Les mesures expérimentales de transmittance  $|t|^2$  et de réflectance  $|r|^2$  peuvent facilement être acquises par spectroscopie sur de larges plages de longueurs d'onde. Ainsi, les paramètres effectifs sont déterminés en constatant une coïncidence suffisante entre les mesures et les simulations de transmittance et de réflectance, conformément à un modèle. Dans la référence [3], un indice effectif négatif est établi dans l'infrarouge pour un métamatériau structuré en résille (*fishnet*) en faisant correspondre des simulations FDTD avec des mesures de transmittance et réflectance par spectroscopie FTIR (en anglais *Fourier Transform InfraRed*).

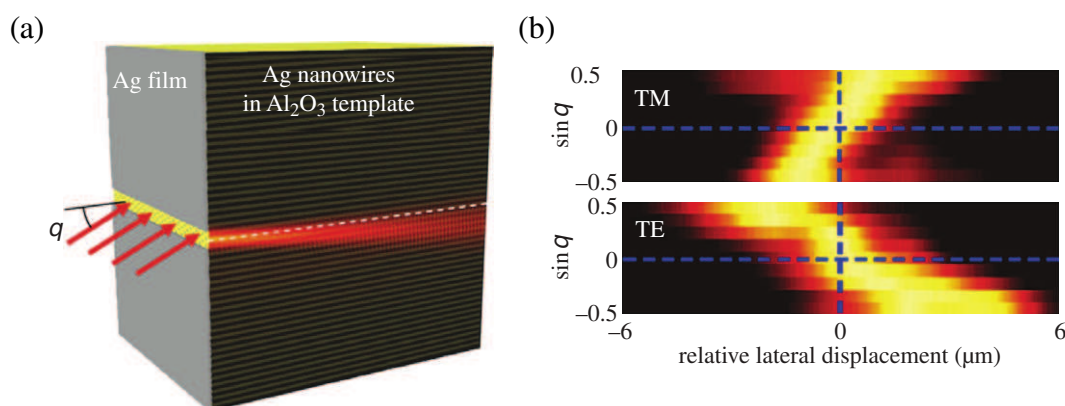
Parvenir à une coïncidence acceptable nécessite d'ajuster les paramètres du modèle invoqué, ce qui peut être difficile par exemple dans le cas de milieux désordonnés suivant la forme des inclusions, comme cela a été évoqué dans la section 1.2 pour la théorie de Maxwell-Garnett. Cette méthode est toutefois insuffisante quand elle est appliquée en incidence normale uniquement, car la dépendance angulaire de la réponse spectrale des métamatériaux est négligée. L'emploi de la méthode est même erroné quand un métamatériau est supposé isotrope alors qu'un indice effectif éventuellement négatif unique est recherché, comme par exemple pour la structure *fishnet* de la référence [3]. Driscoll *et al.* [4] réalisent donc simultanément cette recherche de correspondance avec des données expérimentales acquises à plusieurs angles d'incidence, afin de s'affranchir de la difficulté de déterminer des informations de phase aux fréquences térahertz et au-dessus. Cette multiplicité des données permet alors théoriquement d'accéder à toutes les composantes des tenseurs de permittivité et perméabilité si les équations sont en nombre suffisant. Résoudre ce système est particulièrement accessible dans le cas de matériaux

composites non magnétiques (i.e.  $\mu = 1$ ), car peu d'équations sont alors requises. Cependant, cette méthode requiert de faire des suppositions sur les composantes des tenseurs, portant par exemple sur leur dispersion. Dans la référence [4], les tenseurs sont supposés ne pas avoir de dépendance angulaire ; dans le cas contraire, c'est-à-dire en présence d'effets non locaux, la variante "angulaire" de la méthode n'a aucun intérêt, car chaque nouvel angle d'incidence amène de nouvelles inconnues.

Des mesures en intensité ont également été effectuées pour mettre en évidence des effets d'invisibilité (*cloaking* en anglais), qu'il s'agisse de rendre invisible un objet en l'entourant d'une coquille composée de nanoparticules auto-assemblées pour supprimer la diffusion [5], ou de faire disparaître une région de l'espace à l'aide d'une cape d'invisibilité nanostructurée [6].

## 2.3 Mises en évidence directe de la propriété de réfraction négative

Deux techniques sont principalement utilisées pour mettre directement en évidence la réfraction négative du flux d'énergie par un métamatériau ; la première consiste à imager le flux d'énergie en sortie du métamatériau le long de l'interface avec l'air, et la deuxième consiste à mettre en évidence un angle de réfraction négatif à l'aide d'un prisme, éventuellement couplé à des montages d'imagerie optique.

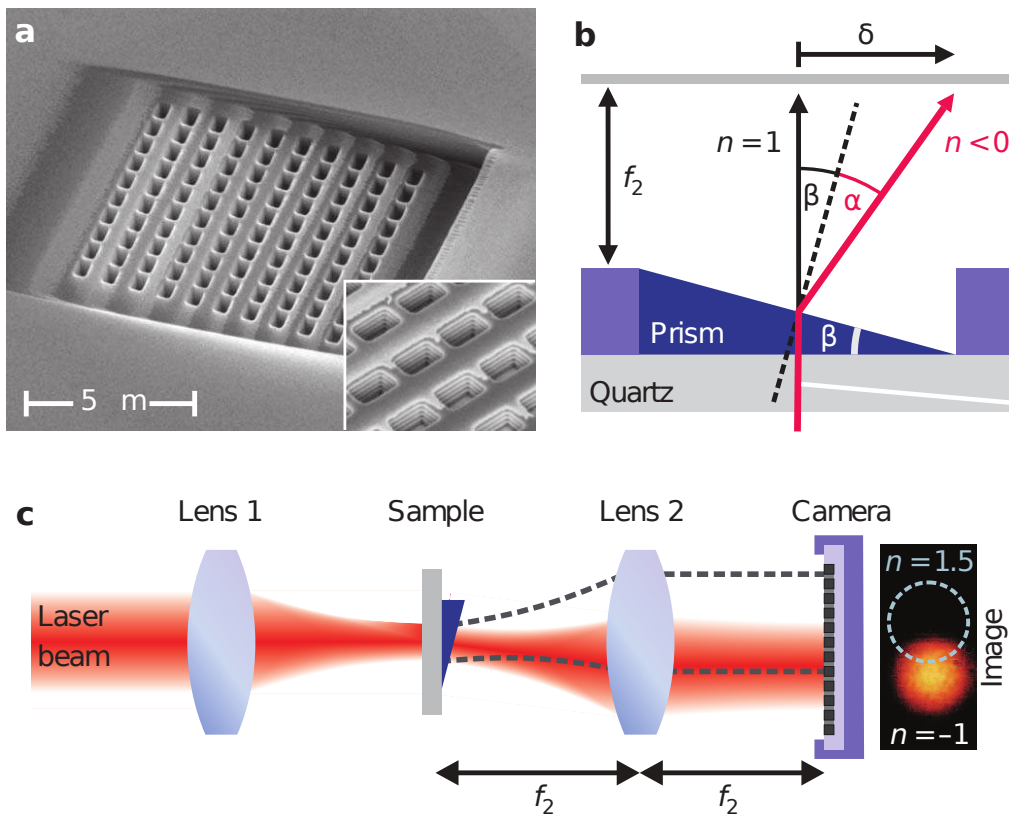


**FIGURE 2.1** – Figures reproduites à partir de la référence [7]. (a) Schéma de la lumière réfléchie négativement à l'interface entre l'air et le métamatériau composé de nanofils métalliques. (b) Résultats de la détection de la lumière en sortie du métamatériau par microscope en champ proche pour une polarisation incidente TE et une polarisation incidente TM.

Yao *et al.* [7, 8] ont ainsi mis évidence la réfraction négative d'un faisceau de lumière dans un métamatériau composé de nanofils d'argent encapsulés dans une matrice diélectrique en collectant la lumière à la surface de sortie à l'aide d'un microscope en champ proche associé à une sonde locale en mouvement (cf figure 2.1) ; selon le principe physique décrit dans la figure 1.4, seule la lumière polarisée *TM* subit une réfraction négative à cause d'une dispersion hyperbolique, alors que la lumière *TE* est réfractée positivement : des déplacements positifs ou négatifs par rapport à la normale sont alors observés. La même méthode a également été appliquée par Xu *et al.* [9] à la caractérisation d'une super-lentille plate composée d'un empilement métal/diélectrique MDMDM. Il peut parfois être difficile de mettre

en évidence des déplacements significatifs : pour les milieux indéfinis étudiés [7,8], le rapport d'aspect est de l'ordre de 1000, alors que le diamètre des nanofils est de quelques dizaines de nanomètres (plus le rapport d'aspect est important, plus les déplacements observés sont grands).

Le prisme apparaît alors comme une alternative intéressante permettant de mesurer des angles et non pas des (faibles) distances. Utilisée pour faire la première preuve expérimentale de réfraction négative dans un cristal photonique 2D aux longueurs d'onde télécoms [10], cette méthode est étendue de façon standard aux métamatériaux [11–13] ; le principe est illustré sur la figure 2.1 pour un métamatériau *fishnet*. Un prisme composé du matériau à caractériser est éclairé sous incidence normale (notons que réaliser un prisme à partir du métamatériau peut constituer une contrainte technologique très forte). Si l'angle que fait le faisceau en sortie avec cette première normale est supérieur à l'angle du prisme, alors la réfraction négative est avérée.



**FIGURE 2.2** – Figures reproduites à partir de la référence [11]. Mise en évidence de la réfraction négative. (a) Images par microscopie électronique à balayage d'un prisme constitué d'un métamatériau 3D fishnet. (b) Géométrie du dispositif de mesure angulaire ;  $\delta$  correspond à la différence de position entre un faisceau passant dans une fenêtre de l'échantillon ( $n = 1$ ) et un faisceau passant dans l'échantillon. L'angle de réfraction  $\alpha$  est déduit de  $\delta$ . (c) Montage expérimental pour la mesure des angles de réfraction permettant d'imager l'espace de Fourier dans le plan de la caméra CCD (en anglais Charge-Coupled Device).

Si les mesures de microscopie optique en champ proche et le prisme permettent d'observer la réfraction par des métamatériaux, elles échouent à déterminer les propriétés de propagation des ondes. En effet, les figures 2.1 et 2.2 montrent le même phénomène de réfraction négative du flux d'énergie qui repose cependant sur deux principes physiques différents. Le milieu de nanofils métalliques est caractérisé par une dispersion hyperbolique (cf chapitre 1). Au contraire, des simulations complémentaires de la super-



lentille plate MDMDM basée sur la décomposition en harmoniques de Bloch révèlent un mécanisme plus complexe : le mode de Bloch dominant est celui d'indice  $m = 1$  et n'observe pas de comportement main-gauche, les autres harmoniques interférant constructivement dans le plan image [13] (les autres modes de Bloch, non négligeables dans ce cas, participent à la formation des images, contrairement à l'approche de conception préconisée dans la section 1.3.1).

## 2.4 Méthodes interférométriques

Le recours à des solutions expérimentales basées sur l'interférométrie est justifié pour contourner l'absence de caractéristiques de propagation par les méthodes de recherche de correspondance et de mesure directe de la réfraction. Le principe général de ces mesures interférométriques est d'extraire expérimentalement un déphasage entre une référence et un matériau inconnu, pour déterminer la phase à la réflexion, à la transmission ou lors de la propagation.

Un interféromètre de Mach-Zehnder peut être utilisé pour mesurer le déphasage subi par la lumière transmise à travers des métamatériaux. Ces mesures de déphasage sont ensuite comparées à des simulations FDTD, ce qui permet de déterminer par correspondance une permittivité nulle [14] ou d'établir une propagation négative de la phase [15]. Il s'agit toutefois d'une méthode indirecte. Au contraire, les vitesses de groupe et de phase d'un métamatériau *fishnet* ont été simultanément et directement mesurées par Dolling *et al.* en analysant le déphasage temporel d'une impulsion laser à l'aide d'un interféromètre de Michelson [16].

Afin d'appliquer l'algorithme d'inversion introduit dans la section 1.4, des montages optiques d'interférométrie sont utilisés pour mesurer des coefficients complexes de transmission et de réflexion [17–19]. Aucun de ces travaux ne présente toutefois de mesures à incidence oblique, probablement à cause de la difficulté d'insérer cette fonctionnalité dans des dispositifs déjà complexes. D'autre part, les sources de lumières ont également leur importance. L'utilisation d'un lot de diodes laser accordables est par exemple incompatible avec la caractérisation de métamatériaux car le spectre qu'elles forment n'est pas continu [17], tandis que les sources à supercontinuum ont un spectre pouvant être trop restreint [19]. La méthode adoptée dans les références [20–22] pour mesurer les coefficients complexes consiste à structurer les matériaux en réseaux diffractifs et à inverser les intensités diffractées dans différents ordres. Le principe est détaillé dans le chapitre 3. Ces échantillons diffractifs ont l'avantage de pouvoir être éclairés à incidence oblique. Mais malheureusement la structuration supplémentaire du matériau à analyser peut être contraignante. L'inconvénient principal de cette méthode est qu'elle nécessite un très grand rapport signal sur bruit, particulièrement lorsque que de faibles déphasages sont mesurés. Les mesures d'intensités sont effectuées avec un spectromètre FTIR : le spectre de la source, continu et possiblement large, n'est alors plus une limitation (en toute rigueur cela dépend également des caractéristiques du montage et des optiques utilisées).

L'algorithme d'inversion de la section 1.4 appliqué en mesurant expérimentalement les coefficients complexes  $r$  et  $t$  permet finalement de déterminer les paramètres effectifs  $k_z$ ,  $\epsilon(k_x, \omega)$  et  $\mu(k_x, \omega)$  décrivant entièrement la propagation des ondes. Une méthode de validation de l'approximation du mode

fondamental est introduite sur le modèle des travaux de l'équipe de Ari Sihvola sur les composites diélectriques [23]. En effet, de nouveaux coefficients  $r_{inv}$  et  $t_{inv}$  peuvent être calculés à partir de ces paramètres effectifs et de coefficients de Fresnel. La comparaison de  $r$  et  $t$  à  $r_{inv}$  et  $t_{inv}$  peut suffire à infirmer l'approximation du mode fondamental. À ma connaissance, le principe de cette vérification n'a encore jamais été mis en application expérimentalement.

## 2.5 Cas particuliers des nanostructures planaires

Les nanostructures planaires ne peuvent pas toujours être caractérisées par les méthodes précédentes du fait de la superposition des modes de Bloch ou de leur faible épaisseur. Des approches différentes peuvent être adoptées suivant que le matériau est diélectrique ou métallique.

La dispersion modale de la lumière visible dans une membrane en nitrure de silicium d'épaisseur 200 nm percée de trous est déterminée en excitant les modes de Bloch avec un faisceau d'électrons qui balaie la surface [24]. La lumière réémise est ensuite collectée en fonction de la position et de l'angle, fournissant des images à haute résolution des modes de Bloch propagatifs entre 450 et 700 nm. Pour les structures métalliques, si l'épaisseur de métal est très faible devant la longueur d'onde on doit les considérer comme des *nano-scatterers*. Par exemple, dans le cadre de la mesure de l'indice d'un métafilm de SRRs à l'aide de réseaux diffractifs, Kante *et al.* extraient de leur recherche de correspondance une épaisseur effective deux fois plus importante que l'épaisseur physique [21, 22] ; cette distance effective peut être vue comme une distance caractéristique jusqu'à laquelle les champs locaux sont ressentis en dehors du métafilm. Si cette épaisseur effective est de l'ordre de la période  $\Lambda$  dans le plan du métafilm, les paramètres effectifs extraits sont ceux d'un matériau artificiel homogène ; cette dernière condition n'est toutefois valable qu'en limite quasi-statique [4]. Une alternative consiste alors à étudier d'une part le *scattering* de SRRs uniques pour extraire leurs polarisabilités électriques et magnétiques [25–27], et d'autre part le couplage des SRRs entre eux au sein du métafilm [28].

## 2.6 Conclusion

Plusieurs méthodes de caractérisation de nanomatériaux optiques artificiels ont été examinées. Les méthodes directes, c'est-à-dire sans recherche de correspondance par confrontation avec des simulations numériques, peuvent globalement être divisées en deux groupes : celles permettant d'accéder aux propriétés de propagation des ondes, et celles étant des solutions expérimentales mettant uniquement en évidence la réfraction négative du flux d'énergie.

Le chapitre 1 a introduit un algorithme d'inversion des coefficients complexes de transmission et de réflexion en paramètres effectifs de propagation. Ces données complexes peuvent être obtenues en utilisant des montages optiques interférométriques ; une variante permet cependant d'obtenir ces coefficients en structurant le matériau à caractériser en réseaux diffractifs et en mesurant les intensités dans les différents ordres. L'avantage de cette méthode est de pouvoir être proposée à incidence oblique, sur une large plage continue de longueurs d'onde quand la source est couplée à un FTIR. La description détaillée de cette méthode sera l'objet du chapitre 3 suivant.

## Références

- [1] D. R. Smith, S. Schultz, P. Markoš, and C. M. Soukoulis, “Determination of effective permittivity and permeability of metamaterials from reflection and transmission coefficients,” *Phys. Rev. B* **65**, 195104 (2002).
- [2] C. Menzel, C. Rockstuhl, T. Paul, F. Lederer, and T. Pertsch, “Retrieving effective parameters for metamaterials at oblique incidence,” *Phys. Rev. B* **77**, 195328 (2008).
- [3] D. Chanda, K. Shigeta, S. Gupta, T. Cain, A. Carlson, A. Mihi, A. J. Baca, G. R. Bogart, P. Braun, and J. A. Rogers, “Large-area flexible 3d optical negative index metamaterial formed by nanotransfer printing,” *Nature nanotechnology* **6**, 402–407 (2011).
- [4] T. Driscoll, D. N. Basov, W. J. Padilla, J. J. Mock, and D. R. Smith, “Electromagnetic characterization of planar metamaterials by oblique angle spectroscopic measurements,” *Phys. Rev. B* **75**, 115114 (2007).
- [5] S. Mühlig, M. Farhat, C. Rockstuhl, and F. Lederer, “Cloaking dielectric spherical objects by a shell of metallic nanoparticles,” *Physical Review B* **83**, 195116 (2011).
- [6] J. Valentine, J. Li, T. Zentgraf, G. Bartal, and X. Zhang, “An optical cloak made of dielectrics,” *Nature materials* **8**, 568–571 (2009).
- [7] J. Yao, Y. Wang, K.-T. Tsai, Z. Liu, X. Yin, G. Bartal, A. M. Stacy, Y.-L. Wang, and X. Zhang, “Design, fabrication and characterization of indefinite metamaterials of nanowires,” *Philosophical Transactions of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences* **369**, 3434–3446 (2011).
- [8] J. Yao, Z. Liu, Y. Liu, Y. Wang, C. Sun, G. Bartal, A. M. Stacy, and X. Zhang, “Optical negative refraction in bulk metamaterials of nanowires,” *Science* **321**, 930 (2008).
- [9] T. Xu, A. Agrawal, M. Abashin, K. J. Chau, and H. J. Lezec, “All-angle negative refraction and active flat lensing of ultraviolet light,” *Nature* **497**, 470–474 (2013).
- [10] A. Berrier, M. Mulot, M. Swillo, M. Qiu, L. Thylén, A. Talneau, and S. Anand, “Negative refraction at infrared wavelengths in a two-dimensional photonic crystal,” *Phys. Rev. Lett.* **93**, 073902 (2004).
- [11] J. Valentine, S. Zhang, T. Zentgraf, E. Ulin-Avila, D. A. Genov, G. Bartal, and X. Zhang, “Three-dimensional optical metamaterial with a negative refractive index,” *nature* **455**, 376–379 (2008).
- [12] J. Parsons and A. Polman, “A copper negative index metamaterial in the visible/near-infrared,” *Applied Physics Letters* **99**, 161108 (2011).
- [13] R. Maas, E. Verhagen, J. Parsons, and A. Polman, “Negative refractive index and higher-order harmonics in layered metallodielectric optical metamaterials,” *ACS Photonics* **1**, 670–676 (2014).
- [14] R. Maas, J. Parsons, N. Engheta, and A. Polman, “Experimental realization of an epsilon-near-zero metamaterial at visible wavelengths,” *Nature Photonics* **7**, 907–912 (2013).
- [15] M. van de Haar, R. Maas, H. Schokker, and A. Polman, “Experimental realization of a polarization-independent ultraviolet/visible coaxial plasmonic metamaterial,” *Nano letters* **14**, 6356–6360 (2014).

- [16] G. Dolling, C. Enkrich, M. Wegener, C. M. Soukoulis, and S. Linden, "Simultaneous negative phase and group velocity of light in a metamaterial," *Science* **312**, 892–894 (2006).
- [17] V. P. Drachev, W. Cai, U. Chettiar, H.-K. Yuan, A. K. Sarychev, A. V. Kildishev, G. Klimeck, and V. M. Shalaev, "Experimental verification of an optical negative-index material," *Laser Physics Letters* **3**, 49–55 (2006).
- [18] E. Pshenay-Severin, F. Setzpfandt, C. Helgert, U. Hübner, C. Menzel, A. Chipouline, C. Rockstuhl, A. Tünnermann, F. Lederer, and T. Pertsch, "Experimental determination of the dispersion relation of light in metamaterials by white-light interferometry," *J. Opt. Soc. Am. B* **27**, 660–666 (2010).
- [19] K. O'Brien, N. D. Lanzillotti-Kimura, H. Suchowski, B. Kante, Y. Park, X. Yin, and X. Zhang, "Reflective interferometry for optical metamaterial phase measurements," *Opt. Lett.* **37**, 4089–4091 (2012).
- [20] S. Zhang, W. Fan, N. C. Panoiu, K. J. Malloy, R. M. Osgood, and S. R. J. Brueck, "Experimental demonstration of near-infrared negative-index metamaterials," *Phys. Rev. Lett.* **95**, 137404 (2005).
- [21] B. Kanté, J.-M. Lourtioz, and A. de Lustrac, "Infrared metafilms on a dielectric substrate," *Phys. Rev. B* **80**, 205120 (2009).
- [22] B. Kanté, "Les métamatériaux, des micro-ondes à l'optique, théorie et applications," *Ann. Phys.* **34**, 1–120 (2009).
- [23] J. Qi, H. Kettunen, H. Wallen, and A. Sihvola, "Compensation of fabry–pérot resonances in homogenization of dielectric composites," *Antennas and Wireless Propagation Letters, IEEE* **9**, 1057–1060 (2010).
- [24] R. Sapienza, T. Coenen, J. Renger, M. Kuttge, N. Van Hulst, and A. Polman, "Deep-subwavelength imaging of the modal dispersion of light," *Nature materials* **11**, 781–787 (2012).
- [25] M. Husnik, M. W. Klein, N. Feth, M. König, J. Niegemann, K. Busch, S. Linden, and M. Wegener, "Absolute extinction cross-section of individual magnetic split-ring resonators," *Nature Photonics* **2**, 614–617 (2008).
- [26] I. Sersic, C. Tuambalangana, and A. F. Koenderink, "Fourier microscopy of single plasmonic scatterers," *New Journal of Physics* **13**, 083019 (2011).
- [27] I. Sersic, C. Tuambalangana, T. Kampfrath, and A. F. Koenderink, "Magnetoelectric point scattering theory for metamaterial scatterers," *Phys. Rev. B* **83**, 245102 (2011).
- [28] I. Sersic, M. Frimmer, E. Verhagen, and A. F. Koenderink, "Electric and magnetic dipole coupling in near-infrared split-ring metamaterial arrays," *Physical review letters* **103**, 213902 (2009).

## Chapitre 3

# Méthode de détermination d'amplitudes complexes à l'aide de réseaux diffractifs

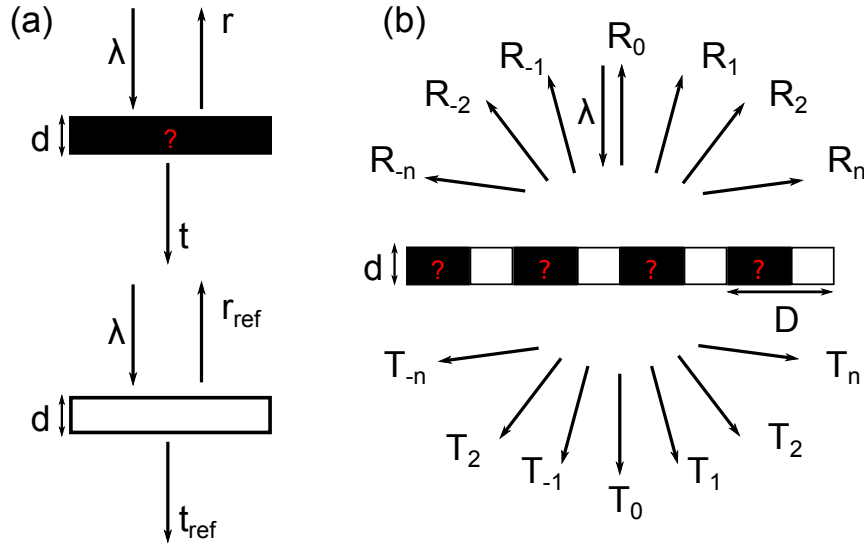
J'analyse d'un point de vue théorique une méthode expérimentale de détermination d'amplitudes complexes à l'aide de réseaux diffractifs. La possibilité d'extraire l'indice optique des matériaux à partir de leurs amplitudes complexes a été discutée dans le chapitre 1. Ce nouveau chapitre vise à indiquer les données expérimentales qui doivent être acquises et traitées. A travers l'exemple du nitrure de silicium, j'applique le principe et montre les limitations de la méthode. J'étudie l'influence de paramètres de la méthode et évalue l'incertitude sur la mesure de l'indice.

### 3.1 Introduction

Dans le chapitre 1, la nécessité d'accéder à des informations sur la phase des ondes se propageant dans les matériaux est justifiée pour extraire les indices optiques [1,2]. Le chapitre 2 fait la description et la comparaison de différentes techniques expérimentales, et distingue celles permettant la mesure de ces informations de phase, à incidence oblique et sur une large plage de longueurs d'onde à la fois. La méthode que j'analyse maintenant est dite indirecte. En effet, les informations de phase sont obtenues uniquement par l'intermédiaire de mesures en intensité, mais sans mesurer effectivement de déphasage. Dans ce chapitre, je décris tout d'abord le principe de la méthode. Dans les références où cette méthode est utilisée [3–5], les mesures en intensité sont effectuées à l'aide d'un spectromètre à transformée de Fourier ou spectromètre FTIR (en anglais *Fourier Transform InfraRed*). A faible résolution spectrale, les oscillations à hautes fréquences du signal dues aux résonances de Fabry-Pérot dans le substrat ne sont pas résolues, les intensités transmises et réfléchies mesurées sont alors des moyennes. Il convient dès lors de se demander si les informations de phase ne sont pas en partie détruites ; par là même, il s'agit pour la première fois de faire l'étude de l'influence du substrat dans cette méthode.

### 3.2 Principe

Considérons une couche d'épaisseur finie  $d$  du matériau à caractériser. Les amplitudes complexes de transmission et de réflexion  $t$  et  $r$  correspondant à cette couche sont obtenues par mesure des intensités diffractées par un réseau unidimensionnel de période  $D \gg \lambda$ . Ce réseau diffractif est composé du

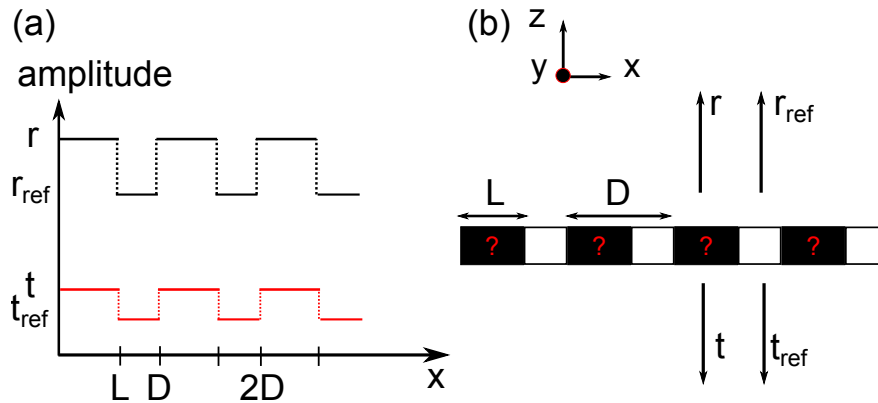


**FIGURE 3.1** – Principe de la méthode. (a) Schémas du matériau à caractériser d'amplitudes complexes recherchées  $t$  et  $r$  et du matériau de référence d'amplitudes complexes connues  $t_{\text{ref}}$  et  $r_{\text{ref}}$ . (b) Schéma du réseau diffractif permettant la détermination des amplitudes complexes du matériau à caractériser : le réseau unidimensionnel de période  $D$  est composé du matériau à caractériser et du matériau de référence.

matériau à analyser et d'un matériau "référence" d'amplitudes connues  $t_{\text{ref}}$  et  $r_{\text{ref}}$  (cf figure 3.1). Le lien entre les intensités diffractées par ce réseau et les amplitudes complexes est établi en considérant les amplitudes de transmission et de réflexion du réseau entier comme des fonctions  $D$ –périodiques (cf figure 3.2). L'amplitude transmise à travers le réseau tout entier s'écrit ainsi comme une fonction  $D$ –périodique  $A$  telle que

$$A(x) = \begin{cases} t & \text{si } 0 \leq x < L \\ t_{\text{ref}} & \text{si } L \leq x < D. \end{cases} \quad (3.1)$$

L'amplitude  $A$  peut donc être décomposée en série de Fourier :



**FIGURE 3.2** – Principe du calcul de l'intensité diffractée par le réseau dans chacun des ordres. (a) Les amplitudes complexes du réseau diffractif sont considérées comme des fonctions périodiques de  $x$ . (b) Les amplitudes complexes périodiques du réseau entier s'écrivent en fonction des amplitudes complexes  $t$  et  $r$  du matériau à caractériser et celles  $t_{\text{ref}}$  et  $r_{\text{ref}}$  du matériau de référence.

$$A(x) = \sum_{n=-\infty}^{n=+\infty} A_n e^{i2\pi \frac{n}{D} x}, \quad (3.2)$$

les coefficients de la série de Fourier étant égaux à

$$A_n = \frac{1}{D} \int_0^D A(x) e^{-i2\pi \frac{n}{D} x} dx, \quad (3.3)$$

et finalement donnés par

$$\begin{cases} A_0 = t \frac{L}{D} + t_{\text{ref}}(1 - \frac{L}{D}) \\ A_n = \frac{e^{-i\frac{\pi n L}{D}}}{\pi n} (t - t_{\text{ref}}) \sin(\frac{\pi n L}{D}), \forall n \in \mathbb{Z}^*. \end{cases} \quad (3.4)$$

L'intensité diffractée dans chacun des ordres transmis s'écrit alors :

$$\begin{cases} T_0 = |A_0|^2 = |t \frac{L}{D} + t_{\text{ref}}(1 - \frac{L}{D})|^2 \text{ dans l'ordre } 0 \\ T_n = |A_n|^2 = \frac{L^2}{D^2} |t - t_{\text{ref}}|^2 \text{sinc}^2(\frac{\pi n L}{D}) \text{ dans les autres ordres.} \end{cases} \quad (3.5)$$

En conclusion, pour déterminer l'amplitude complexe de transmission  $t = |t|e^{i\phi_t}$ , il suffit de résoudre un système de deux équations à deux inconnues. Les deux inconnues sont la phase  $\phi_t$  et le module  $|t|$  de l'amplitude. Les deux équations sont celle donnant l'intensité  $T_0$  diffractée dans l'ordre 0 et celle donnant l'intensité  $T_n$  diffractée dans tout autre ordre  $n$  (redondance des équations). Les autres paramètres du système sont ainsi le facteur de remplissage  $L/D$  du réseau et l'amplitude de transmission du matériau de référence. Une autre variante de cette méthode expérimentale existe. En effet, mesurer l'intensité  $T_n$  diffractée dans tout autre ordre  $n$  et l'intensité  $T$  transmise à travers une couche continue du matériau à caractériser de même épaisseur  $d$  que le réseau diffractif permet également de déterminer l'amplitude complexe de transmission  $t$ . Le module de  $t$  est donné par  $\sqrt{T}$  et la phase  $\phi_t$  est déduite des intensités  $T$  et  $T_n$ , comme cela est fait dans la sous-section 3.4.1 avec  $T$  et  $T_0$ .

De même, l'intensité diffractée dans chacun des ordres réfléchis s'écrit :

$$\begin{cases} R_0 = |A_0|^2 = |r \frac{L}{D} + r_{\text{ref}}(1 - \frac{L}{D})|^2 \text{ dans l'ordre } 0 \\ R_n = |A_n|^2 = \frac{L^2}{D^2} |r - r_{\text{ref}}|^2 \text{sinc}^2(\frac{\pi n L}{D}) \text{ dans les autres ordres.} \end{cases} \quad (3.6)$$

Décomposons la résolution de ces systèmes d'équations. Les paramètres suivants sont introduits :

$$\begin{cases} \eta = \frac{1-L/D}{L/D} \\ \gamma_0 = \frac{T_0}{|t_{\text{ref}}|^2 L^2/D^2} \\ \gamma_n = \frac{T_n}{|t_{\text{ref}}|^2 \sin^2(\pi \frac{L}{D})/\pi^2} \\ a_t = \frac{t}{t_{\text{ref}}} = a'_t + i a''_t \end{cases} \quad (3.7)$$

Ainsi,

$$\begin{cases} \gamma_0 = |(a'_t + \eta) + ia''_t|^2 = (a'_t + \eta)^2 + a''_t{}^2 \\ \gamma_n = |(a'_t - 1) + ia''_t|^2 = (a'_t - 1)^2 + a''_t{}^2, \end{cases} \quad (3.8)$$

d'où

$$\begin{cases} a'_t = \frac{(\gamma_0 - \gamma_n) - (\eta^2 - 1)}{2(\eta + 1)} \\ a''_t = \pm \sqrt{\gamma_0 - (a'_t + \eta)^2} \end{cases} \quad (3.9)$$

Et finalement, l'amplitude complexe de transmission est extraite

$$t = a_t t_{\text{ref}}. \quad (3.10)$$

L'argument  $\phi_{a_t}$  de  $a_t$  correspond au déphasage entre l'onde transmise à travers le matériau à caractériser et l'onde transmise à travers le matériau de référence. La racine  $a''_t$  peut être positive ou négative. Par conséquent, le signe du déphasage  $\phi_{a_t}$  est indéterminé. De plus, le déphasage  $\phi_{a_t}$  n'est connu que modulo  $2\pi$ . En section 3.4, j'introduis des éléments théoriques permettant de lever ces deux causes d'indétermination dans certains cas.

De même, en définissant le rapport  $a_r = \frac{r}{r_{\text{ref}}}$  et en résolvant de façon similaire le système (3.6), l'amplitude complexe de réflexion peut également être extraite

$$r = a_r r_{\text{ref}}. \quad (3.11)$$

Les mêmes ambiguïtés demeurent sur le déphasage  $\phi_{a_r}$  de  $a_r$  correspondant au déphasage avec l'onde réfléchie de référence.

### 3.3 MULTICS : outil de calcul d'amplitudes complexes pour des empilements multi-couches

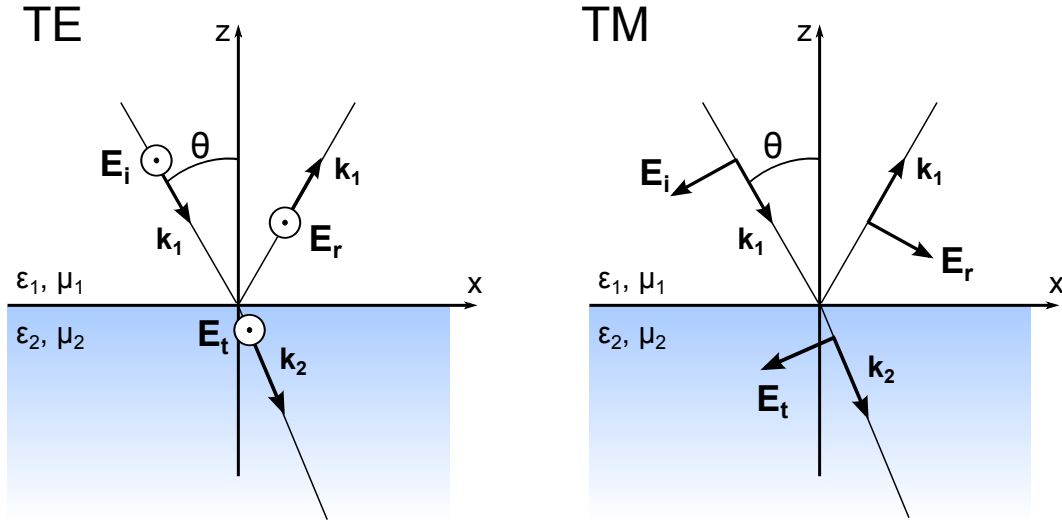
Au cours de ma thèse, j'ai développé le code MULTICS conjointement avec Inès Massiot et sous l'encadrement de Stéphane Collin. Cet outil permet de calculer des amplitudes complexes à tout angle d'incidence, pour des empilements multi-couches composés de matériaux isotropes ou de certains matériaux anisotropes. Ce code repose sur un algorithme récursif de matrices S [6].

#### 3.3.1 Coefficients de Fresnel de réflexion et de transmission

##### Incidence sur un milieu isotrope

Les coefficients de Fresnel sont dérivés en écrivant les conditions de continuité des composantes de champs électriques et magnétiques d'ondes planes à l'interface entre deux milieux. Cette dérivation est décrite en détail dans plusieurs ouvrages de référence [7–9]. On considère une onde plane  $\mathbf{E}_i \exp i(\omega t - \mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r})$  de vecteur d'onde  $\mathbf{k}_1 = (k_{x1}, k_{z1})$  polarisée linéairement (cf figure 3.3). Cette onde se propage dans le milieu incident isotrope 1 et est transmise dans le milieu isotrope 2, dans le plan d'incidence  $xz$ . L'onde est polarisée TE si le champ magnétique est perpendiculaire au plan d'incidence ; elle est polarisée TM si le champ électrique est perpendiculaire à  $\mathbf{k}_1$  et se situe dans le plan d'incidence. La





**FIGURE 3.3** – Réflexion et réfraction d'une onde plane à l'interface entre deux milieux pour une onde polarisée TE et une onde polarisée TM.

restriction du problème à ces deux polarisations se justifie par le fait que toute onde plane peut être décomposée en une superposition d'une onde polarisée TE et d'une onde polarisée TM. De plus, cette restriction est aussi compatible avec le fait que la méthode d'extraction de l'indice est elle-même réduite à ces deux polarisations orthogonales [2]. Le milieu incident 1 a une permittivité  $\epsilon_1$  et une perméabilité  $\mu_1$ . Le milieu 2 a une permittivité  $\epsilon_2$  et une perméabilité  $\mu_2$ . L'onde transmise dans le milieu 2 a un vecteur d'onde  $\mathbf{k}_2 = (k_{x2}, k_{z2})$ . La composante tangentielle des vecteurs d'onde est conservée du milieu incident au milieu 2, c'est-à-dire :  $k_{x1} = k_{x2} = k_x$ . On rappelle que  $|\mathbf{k}_1| = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon_1 \mu_1}$  et  $|\mathbf{k}_2| = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon_2 \mu_2}$ . Les composantes longitudinales peuvent ainsi être calculées :  $k_{z1} = \sqrt{k_1^2 - k_x^2}$  et  $k_{z2} = \sqrt{k_2^2 - k_x^2}$ . L'écriture de la continuité des champs à l'interface entre les milieux 1 et 2 permet d'introduire les coefficients de Fresnel  $r$  et  $t$ . Ils sont définis à partir des amplitudes des champs réfléchis et transmis,  $\mathbf{E}_r = r_d^{(1)} \mathbf{E}_i$  et  $\mathbf{E}_t = t_d^{(1)} \mathbf{E}_i$ , et ainsi égaux à :

$$\begin{cases} \text{TE : } r_d^{(1)} = \frac{k_{z1}/\mu_1 - k_{z2}/\mu_2}{k_{z1}/\mu_1 + k_{z2}/\mu_2}, t_d^{(1)} = \frac{2k_{z1}/\mu_1}{k_{z1}/\mu_1 + k_{z2}/\mu_2} \\ \text{TM : } r_d^{(1)} = \frac{k_{z1}/\epsilon_1 - k_{z2}/\epsilon_2}{k_{z1}/\epsilon_1 + k_{z2}/\epsilon_2}, t_d^{(1)} = \frac{2k_{z1}/\epsilon_1}{k_{z1}/\epsilon_1 + k_{z2}/\epsilon_2} \end{cases} \quad (3.12)$$

De la même façon on peut définir les coefficients de Fresnel  $r_u^{(1)}$  et  $t_u^{(1)}$  correspondant à une onde incidente dans le milieu 2 et transmise dans le milieu 1 :

$$\begin{cases} \text{TE : } r_u^{(1)} = \frac{k_{z2}/\mu_2 - k_{z1}/\mu_1}{k_{z1}/\mu_1 + k_{z2}/\mu_2}, t_u^{(1)} = \frac{2k_{z2}/\mu_2}{k_{z1}/\mu_1 + k_{z2}/\mu_2} \\ \text{TM : } r_u^{(1)} = \frac{k_{z2}/\epsilon_2 - k_{z1}/\epsilon_1}{k_{z1}/\epsilon_1 + k_{z2}/\epsilon_2}, t_u^{(1)} = \frac{2k_{z2}/\epsilon_2}{k_{z1}/\epsilon_1 + k_{z2}/\epsilon_2} \end{cases} \quad (3.13)$$

### Incidence sur un milieu anisotrope

Pour des matériaux anisotropes, la permittivité ou la perméabilité ne sont pas des scalaires mais peuvent être écrites dans certains cas sous forme de matrices ou "tenseurs". Je détermine maintenant les coefficients de Fresnel à l'interface entre un milieu incident isotrope 1 et un milieu anisotrope 2. Les étapes menant à la détermination des coefficients de Fresnel pour un milieu 2 constitué d'un matériau main-gauche uniaxe sont détaillées dans les travaux de Hu *et al.* [10]. J'ai adapté ces étapes à la situation où le milieu 2 est un milieu anisotrope tel que sa permittivité  $\hat{\epsilon}_2$  est une matrice diagonale et sa perméabilité un scalaire  $\mu_2$ . Ces résultats sont notamment utiles dans le cas de matériaux uniaxes artificiels (avec  $\mu_2 = 1$ , milieu non magnétique).

Le milieu 2 consiste en un matériau de permittivité

$$\hat{\epsilon}_2 = \begin{pmatrix} \epsilon_{2x} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{2y} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{2z} \end{pmatrix}. \quad (3.14)$$

Dans ce cas, les coefficients de Fresnel à l'interface entre les milieux 1 et 2 pour chacune des polarisations TE ou TM sont donnés par

$$\begin{cases} \text{TE : } r_d^{(1)} = \frac{k_{z1}/\mu_1 - k_{z2}/\mu_2}{k_{z1}/\mu_1 + k_{z2}/\mu_2}, t_d^{(1)} = \frac{2k_{z1}/\mu_1}{k_{z1}/\mu_1 + k_{z2}/\mu_2} \\ \text{TM : } r_d^{(1)} = \frac{k_{z1}/\epsilon_1 - k_{z2}/\epsilon_{2x}}{k_{z1}/\epsilon_1 + k_{z2}/\epsilon_{2x}}, t_d^{(1)} = \frac{2k_{z1}/\epsilon_1}{k_{z1}/\epsilon_1 + k_{z2}/\epsilon_{2x}}, \end{cases} \quad (3.15)$$

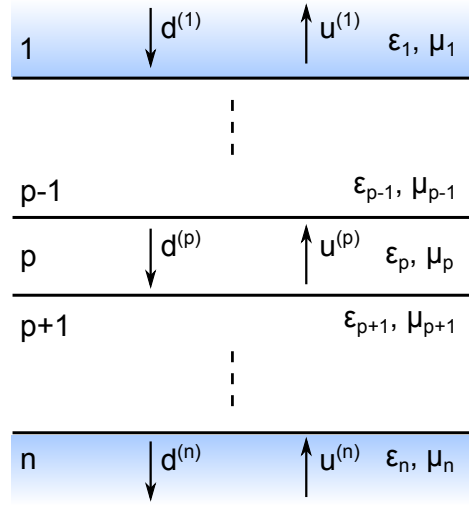
les deux relations de dispersion de ce milieu anisotrope étant effectivement différentes pour les deux polarisations :

$$\begin{cases} \text{TE : } \frac{k_x^2}{\epsilon_{2y}} + \frac{k_z^2}{\epsilon_{2y}} = \frac{\omega^2}{c^2} \mu_2 \\ \text{TM : } \frac{k_x^2}{\epsilon_{2z}} + \frac{k_z^2}{\epsilon_{2x}} = \frac{\omega^2}{c^2} \mu_2. \end{cases} \quad (3.16)$$

Pour la polarisation TE, la surface isofréquence est circulaire, comme pour un matériau isotrope. Pour la polarisation TM, la surface isofréquence est elliptique, en accord avec les travaux sur les milieux anisotropes indéfinis pour lesquels une composante négative  $\epsilon_{2z}$  conduit à une surface isofréquence hyperbolique et possiblement à un phénomène de réfraction négative [11–13].

### 3.3.2 Calcul par récurrence des amplitudes complexes pour des empilements multicouches

L'objectif de ce calcul est de déterminer l'amplitude des champs quittant une structure composée de  $n - 2$  couches situées entre les deux milieux extérieurs semi-infinis 1 et  $n$ . Chaque empilement de  $p - 1$  couches situé entre les milieux 1 et  $p$  est un système représenté par une "boîte noire". Les ondes  $u^{(1)}$  et  $d^{(p)}$  constituent les sorties et les ondes  $d^{(1)}$  et  $u^{(p)}$  les entrées du système. La matrice  $S^{(p)}$



**FIGURE 3.4** – Schéma d'un empilement vertical de  $n - 2$  couches situé entre les deux milieux extérieurs semi-infinis 1 et  $n$ . Le champs dans chacune des couches  $p$  peut être décomposé en une superposition d'une onde se propageant vers le haut et d'une onde se propageant vers le bas.

permet de lier les entrées et les sorties telle que

$$\begin{pmatrix} d^{(p)} \\ u^{(1)} \end{pmatrix} = S^{(p)} \begin{pmatrix} d^{(1)} \\ u^{(p)} \end{pmatrix}, \quad (3.17)$$

ou explicitement

$$\begin{pmatrix} d^{(p)} \\ u^{(1)} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \tau_{d1}^{(p)} & \rho_{u1}^{(p)} \\ \rho_{d1}^{(p)} & \tau_{u1}^{(p)} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} d^{(1)} \\ u^{(p)} \end{pmatrix}, \quad (3.18)$$

avec

$$\begin{cases} \tau_{d1}^{(p)} = \tau_{d1}^{(p-1)} [1 - \rho_{u1}^{(p-1)} \tilde{r}_d^{(p-1)}]^{-1} \tilde{t}_d^{(p-1)} \\ \rho_{d1}^{(p)} = \rho_{d1}^{(p-1)} + \tau_{d1}^{(p-1)} \tilde{r}_d^{(p-1)} [1 - \tilde{r}_d^{(p-1)} \rho_{u1}^{(p-1)}]^{-1} \tau_{u1}^{(p-1)} \\ \rho_{u1}^{(p)} = \tilde{r}_u^{(p-1)} + \tilde{t}_u^{(p-1)} \rho_{u1}^{(p-1)} [1 - \rho_{u1}^{(p-1)} \tilde{r}_d^{(p-1)}]^{-1} \tilde{t}_d^{(p-1)} \\ \tau_{u1}^{(p)} = \tilde{t}_u^{(p-1)} [1 - \tilde{r}_d^{(p-1)} \rho_{u1}^{(p-1)}]^{-1} \tau_{u1}^{(p-1)} \end{cases}. \quad (3.19)$$

Les coefficients  $\tau_{d1}^{(p)}$  et  $\rho_{u1}^{(p)}$  de la matrice  $S^{(p)}$  sont les coefficients de transmission et réflexion dont la superposition donne l'amplitude se propageant vers le bas dans la couche  $p$ , la combinaison des deux autres coefficients de transmission et réflexion  $\tau_{u1}^{(p)}$  et  $\rho_{d1}^{(p)}$  donnant l'amplitude de l'onde se propageant vers le haut dans le milieu 1. Les équations (3.17) ou (3.18) constituent la propriété de récurrence à démontrer. Ainsi, la matrice  $\tilde{s}^{(p)}$  est introduite pour relier les ondes à l'interface entre les deux couches adjacentes  $p$  et  $p + 1$  :

$$\begin{pmatrix} d^{(p+1)} \\ u^{(p)} \end{pmatrix} = \tilde{s}^{(p)} \begin{pmatrix} d^{(p)} \\ u^{(p+1)} \end{pmatrix}. \quad (3.20)$$

Par ailleurs, les coefficients de cette matrice d'interface  $\tilde{s}^{(p)} = \begin{pmatrix} \tilde{t}_d^{(p)} & \tilde{r}_u^{(p)} \\ \tilde{r}_d^{(p)} & \tilde{t}_u^{(p)} \end{pmatrix}$  peuvent être exprimés en fonction des coefficients de Fresnel à l'interface entre les couches  $p$  et  $p+1$  et du déphasage  $\beta_p = e^{ik_{zp}h_p}$  associé à la propagation dans la couche  $p$  d'épaisseur  $h_p$  d'une onde plane de vecteur d'onde  $k_{zp}$  :

$$\begin{cases} \tilde{t}_d^{(p)} = \beta_p t_d^{(p)} \\ \tilde{r}_u^{(p)} = r_u^{(p)} \\ \tilde{r}_d^{(p)} = \beta_p^2 r_d^{(p)} \\ \tilde{t}_u^{(p)} = \beta_p t_u^{(p)} \end{cases} \quad (3.21)$$

Finalement, en décomposant l'onde  $d^{(p+1)}$  et l'onde  $u^{(1)}$  comme une superposition des ondes  $d^{(1)}$  et  $u^{(p+1)}$ , il est montré que

$$\begin{cases} d^{(p+1)} = \tau_{d1}^{(p+1)} d^{(1)} + \rho_{u1}^{(p+1)} u^{(p+1)} \\ u^{(1)} = \rho_{d1}^{(p+1)} d^{(1)} + \tau_{u1}^{(p+1)} u^{(p+1)}, \end{cases} \quad (3.22)$$

ce qui est équivalent à l'expression matricielle  $\begin{pmatrix} d^{(p+1)} \\ u^{(1)} \end{pmatrix} = S^{(p+1)} \begin{pmatrix} d^{(1)} \\ u^{(p+1)} \end{pmatrix}$ . La récurrence est initialisée en posant  $S^{(1)} = \begin{pmatrix} t_d^{(1)} & r_u^{(1)} \\ r_d^{(1)} & t_u^{(1)} \end{pmatrix}$  (de la même manière, on pose  $\beta_1 = \beta_n = 0$ ). La propriété de récurrence est donc démontrée pour tout entier  $1 \leq p \leq n$ , et en particulier pour  $n$  :  $\begin{pmatrix} d^{(n)} \\ u^{(1)} \end{pmatrix} = S^{(n)} \begin{pmatrix} d^{(1)} \\ u^{(n)} \end{pmatrix}$ .

De plus en supposant qu'il n'existe pas d'onde incidente dans le milieu  $n$ , c'est-à-dire que  $u^{(n)} = 0$ , il vient

$$\begin{cases} d^{(n)} = \tau_{d1}^{(n)} d^{(1)} \\ u^{(1)} = \rho_{d1}^{(n)} d^{(1)} \end{cases} \quad (3.23)$$

En conclusion, cette démonstration fournit les coefficients  $\tau_{d1}^{(n)}$  et  $\rho_{d1}^{(n)}$  de transmission et de réflexion affectée à une onde incidente depuis le milieu 1.

L'avantage principal de cet algorithme de matrice  $S$ , est la stabilité numérique assurée par l'absence de produits de fonctions exponentielles dont le nombre croissant à chaque itération peut faire diverger l'algorithme, contrairement à un algorithme de matrice  $T$ .

### 3.4 Application de la méthode au nitrure de silicium

Dans cette section, je considère que le nitrure de silicium (SiNx) est le matériau à caractériser par la méthode introduite dans la section 3.2. Dans la suite des calculs, la permittivité  $\epsilon(\omega)$  du SiNx résulte de la description du matériau comme la superposition de trois oscillateurs amortis. Précédemment adoptée par Ghenuche *et al.* [14], cette description prévoit que chaque oscillateur  $i$  est décrit par trois paramètres  $\Delta\epsilon_i$ ,  $\omega_{0i}$  et  $\gamma_i$ . La permittivité est alors calculée selon le modèle de Drude-Lorentz :

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_\infty + \sum_i \frac{\Delta\epsilon_i \omega_{0i}^2}{\omega_{0i}^2 - \omega^2 - i\gamma_i \omega}, \quad (3.24)$$

avec  $\epsilon_\infty = 4.11$ . Cette composition de la permittivité du SiNx est d'autant plus correcte qu'elle correspond à l'observation sur les spectres de transmission ou de réflexion de trois bandes d'absorption autour de 3, 4.6 et 13  $\mu\text{m}$  attribuées respectivement à la liaison N-H ( $3330\text{ cm}^{-1}$ ), à la liaison Si-H ( $2170\text{ cm}^{-1}$ ) et à la vibration d'un phonon ( $800\text{ cm}^{-1}$ ). Les paramètres décrivant chaque oscillateur  $i$  sont résumés dans le tableau 3.1 :  $\omega_{0i}$  est la fréquence de résonance,  $\gamma_i$  définit l'amortissement et  $\Delta\epsilon_i$  la variation de permittivité autour de la ligne de base.

$i$	$\Delta\epsilon_i$	$\omega_{0i}\text{ (cm}^{-1}\text{)}$	$\gamma_i\text{ (cm}^{-1}\text{)}$
1	2.17	800	180
2	0.015	2170	135
3	0.03	3330	330

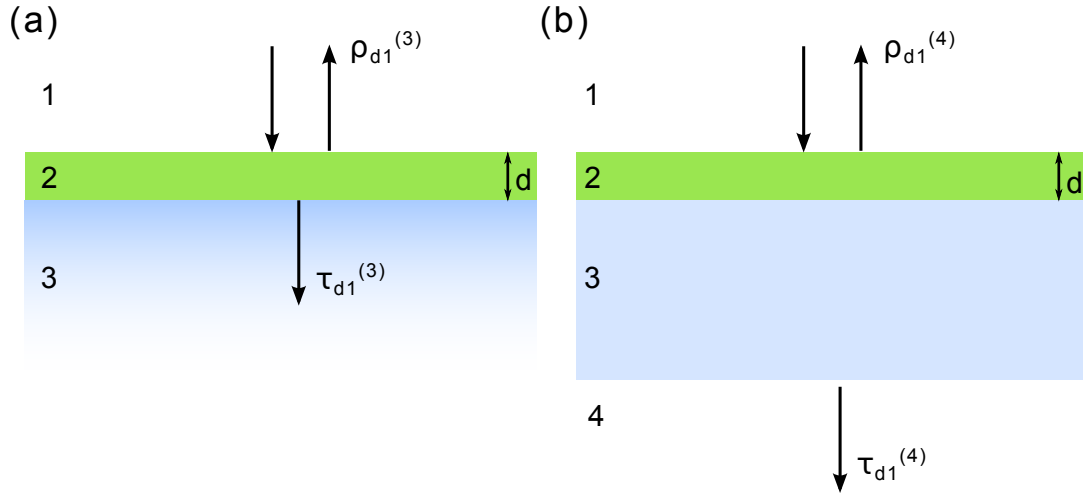
**Tableau 3.1** – Paramètres  $\Delta\epsilon_i$ ,  $\omega_{0i}$  et  $\gamma_i$  de chacun de trois oscillateurs  $i$  contribuant à la description du SiNx par le modèle de Drude-Lorentz défini par l'expression (3.24).

### 3.4.1 Influence du substrat

Je cherche à simuler l'application de la méthode à la détermination de l'indice du SiNx dans les conditions expérimentales utilisées dans les références précédentes [3–5]. Le but principal est d'étudier l'influence du substrat sur la capacité à extraire les amplitudes complexes de transmission et de réflexion conformes pour la détermination de l'indice. En effet, dans le premier article où les coefficients complexes de réflexion et de transmission sont inversés pour déterminer l'indice d'un matériau [1], la couche de matériau à analyser est supposée suspendue. Par la suite, dans les travaux généralisant cette technique d'extraction de l'indice à incidence oblique [2], le matériau est compris entre le substrat et une couche de revêtement, tous deux considérés comme des milieux semi-infinis. Ainsi, d'après Menzel *et al.* [2], les amplitudes complexes de transmission et de réflexion conformes pour la détermination de l'indice doivent correspondre aux coefficients  $\tau_{d1}^{(3)}$  et  $\rho_{d1}^{(3)}$  (définis précédemment dans la section 3.3), le milieu 1 étant la couche de revêtement, le milieu 2 étant constitué du matériau à analyser (ici le SiNx) et le milieu 3 étant le substrat, comme le montre la figure 3.5 (a) (la couche de revêtement est supposée être de l'air). Cependant, les amplitudes complexes de transmission et de réflexion associées aux matériaux sur substrat correspondent aux coefficients  $\tau_{d1}^{(4)}$  et  $\rho_{d1}^{(4)}$  (cf figure 3.5 (b)) : le milieu 3 ne peut pas être considéré semi-infini et les réflexions multiples à l'interface entre l'air (milieu 4) et le substrat ne peuvent être négligées. Je souhaite donc étudier dans quelle mesure il est possible de déterminer expérimentalement les coefficients  $\tau_{d1}^{(3)}$  et  $\rho_{d1}^{(3)}$ .

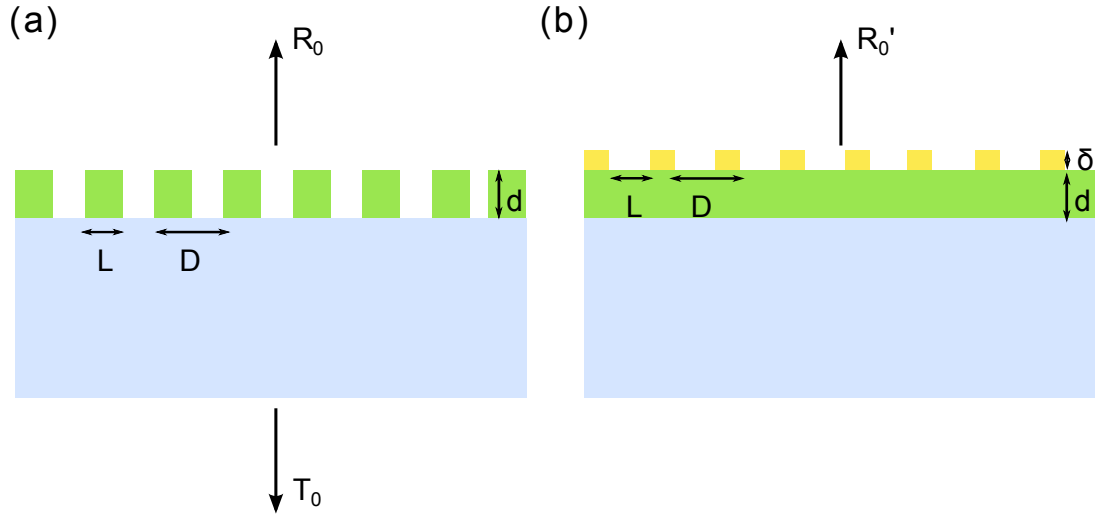
Deux réseaux, schématisés sur la figure 3.6, sont généralement considérés pour mesurer les coefficients  $\tau_{d1}^{(3)}$  et  $\rho_{d1}^{(3)}$ . Le premier consiste en un réseau de SiNx d'épaisseur  $d$  de période  $D$  au pas  $L$  posé sur un substrat ; le second est un réseau d'or d'épaisseur  $\delta$  de période  $D$  au pas  $L$  sur une couche continue de SiNx d'épaisseur  $d$  posée sur un substrat. Les intensités  $T_0$  et  $R_0$  diffractées dans l'ordre 0 par le réseau de SiNx et l'intensité  $R'_0$  diffractée dans l'ordre 0 par le réseau d'or sont définies. Les intensités  $T$  et  $R$  transmises et réfléchies par l'empilement de la figure 3.5 (b) sont également définies à partir des coefficients complexes de transmission et de réflexion  $\tau_{d1}^{(4)}$  et  $\rho_{d1}^{(4)}$  :  $T = |\tau_{d1}^{(4)}|^2$  et  $R = |\rho_{d1}^{(4)}|^2$ . De même,  $R_{Au}$  correspond à l'intensité réfléchie par un empilement or/SiNx/substrat. Les intensités  $T_s$  et  $R_s$  transmises et réfléchies par le substrat d'épaisseur finie sont également introduites. Les intensités

$T_0$ ,  $R_0$ ,  $R'_0$ ,  $T$ ,  $R$ ,  $T_s$  et  $R_s$  sont calculées à incidence normale pour une polarisation TE. Le substrat est supposé d'indice constant 1.5 (se rapprochant de la référence [3] où le substrat est en verre, ce qui est une bonne approximation dans la gamme spectrale du visible et du proche infrarouge 0.5 – 2.5  $\mu\text{m}$ ), ou d'indice constant 3.5 (se rapprochant des références [4] et [5] où le substrat est en silicium, ce qui est une bonne approximation dans la gamme spectrale du visible et du proche infrarouge 2 – 8  $\mu\text{m}$ ). La permittivité  $\epsilon(\omega)$  du SiNx est définie par la formule (3.24). La permittivité  $\epsilon_{Au}(\omega)$  de l'or est définie comme dans la référence [3] par un modèle de Drude :  $\epsilon_{Au}(\omega) = 1 - \omega_p^2 / [\omega(\omega + i\omega_c)]$ , avec la fréquence plasma  $\omega_p = 1.37 \times 10^{16} \text{ s}^{-1}$  et la fréquence de collision  $\omega_c = 4.08 \times 10^{13} \text{ s}^{-1}$ . Le pas et la période des réseaux sont fixés à  $L = 50 \mu\text{m}$  et  $D = 100 \mu\text{m}$ . L'épaisseur de SiNx est fixée à  $d = 500 \text{ nm}$  et l'épaisseur du réseau d'or est fixée à  $\delta = 200 \text{ nm}$ . L'épaisseur des substrats est supposée égale à  $300 \mu\text{m}$ .



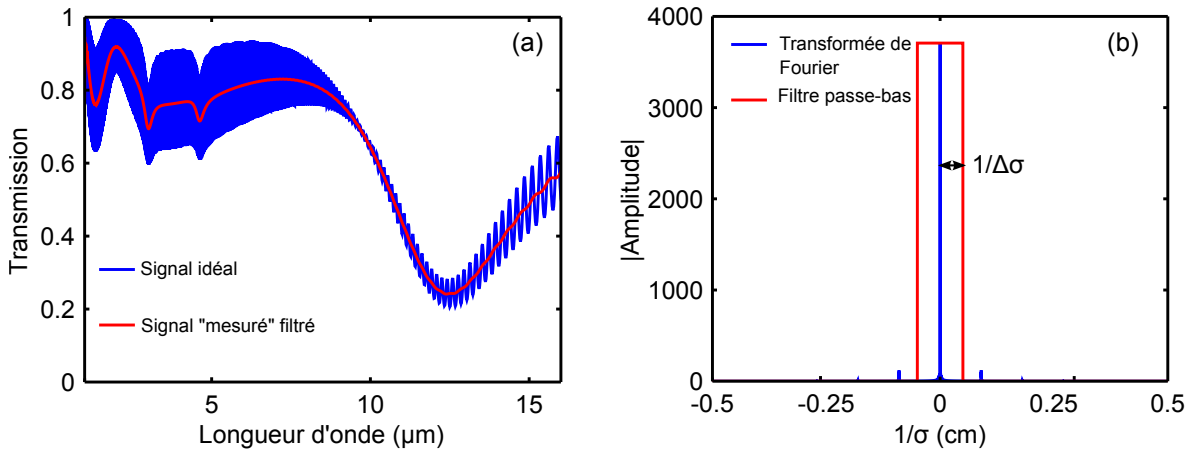
**FIGURE 3.5** – Schémas des coefficients complexes de transmission et réflexion associés à une couche de SiNx d'épaisseur  $d$  posée sur substrat. (a) Dans le cas où le substrat est considéré comme un milieu semi-infini, les coefficients complexes associés sont  $\tau_{d1}^{(3)}$  et  $\rho_{d1}^{(3)}$ . (b) Dans le cas où le substrat est d'épaisseur finie, les coefficients complexes associés sont  $\tau_{d1}^{(4)}$  et  $\rho_{d1}^{(4)}$ .

Les intensités  $T_0$ ,  $R_0$ ,  $R'_0$ ,  $T$ ,  $R$ ,  $T_s$  et  $R_s$  calculées avec MULTICS présentent une modulation à haute fréquence du signal due aux réflexions multiples dans le substrat. Au contraire, ces variations du signal ne sont pas observées pour l'intensité  $R_{Au}$  correspondant à la réflexion sur un empilement or/SiNx/substrat, car l'onde ne pénètre pas dans le substrat (l'épaisseur  $\delta$  de la couche d'or est supérieure à l'épaisseur de peau du métal). Ces signaux, fonction du nombre d'onde  $\sigma$  entre 10000 et 600  $\text{cm}^{-1}$ , sont échantillonnés à un pas constant de  $1 \text{ cm}^{-1}$ . La transformée de Fourier du signal est calculée dans l'espace réciproque en fonction de  $1/\sigma$  de  $-0.5$  à  $0.5 \text{ cm}$ . Les mesures acquises avec un spectromètre FTIR, avec une résolution spectrale de  $\Delta\sigma = 20 \text{ cm}^{-1}$ , sont simulées en appliquant au signal un filtre passe-bas rectangulaire. Ce filtre est représenté par une fonction porte de demi-largeur  $1/\Delta\sigma$  soit  $0.05 \text{ cm}$ . La figure 3.7(a) superpose le signal idéal présentant les oscillations à haute fréquence et le signal filtré simulant la mesure. La figure 3.7(b) montre la fonction porte représentant le filtre passe-bas et la transformée de Fourier du signal correspondant à l'intensité transmise à travers



**FIGURE 3.6** – Schéma des intensités diffractées par les réseaux à base du SiNx à caractériser. (a) Intensités  $T_0$  et  $R_0$  diffractées par les réseaux de SiNx dans l'ordre 0. (b) Intensité  $R'_0$  diffractée par le réseau d'or dans l'ordre 0.

la couche de SiNx posée sur un substrat d'indice 1.5.



**FIGURE 3.7** – Signal correspondant à l'intensité transmise à travers la couche de SiNx posée sur un substrat d'indice 1.5. (a) Spectres du signal idéal  $T$  et du signal filtré "mesuré"  $T_f$  dans l'espace direct sur l'intervalle 1 – 16  $\mu\text{m}$ . (b) Spectres d'amplitude de la transformée de Fourier du signal et de la fonction porte représentant le filtre passe-bas dans l'espace réciproque.

Les intensités  $T_{0,f}$ ,  $R_{0,f}$ ,  $R'_{0,f}$ ,  $T_f$ ,  $R_f$ ,  $T_{s,f}$  et  $R_{s,f}$  sont déterminées en filtrant de la même façon chacune des intensités  $T_0$ ,  $R_0$ ,  $R'_0$ ,  $T$ ,  $R$ ,  $T_s$  et  $R_s$ . Imitant la référence [3], le lien entre ces différentes intensités et  $R_{Au}$  est supposé être donné par les équations

$$\begin{cases} T_{0,f} = \frac{L^2}{D^2} T_f + (1 - \frac{L}{D})^2 T_{s,f} + 2 \frac{L}{D} (1 - \frac{L}{D}) \sqrt{T_f T_{s,f}} \cos(\phi_t - k_0 d) \\ R_{0,f} = \frac{L^2}{D^2} R_f + (1 - \frac{L}{D})^2 R_{s,f} + 2 \frac{L}{D} (1 - \frac{L}{D}) \sqrt{R_f R_{s,f}} \cos(\phi_r - 2k_0 d - (-\pi)) \\ R'_{0,f} = \frac{L^2}{D^2} R_f + (1 - \frac{L}{D})^2 R_{Au} + 2 \frac{L}{D} (1 - \frac{L}{D}) \sqrt{R_f R_{Au}} \cos(\phi'_r + 2k_0 \delta - \Phi_{Au}), \end{cases} \quad (3.25)$$

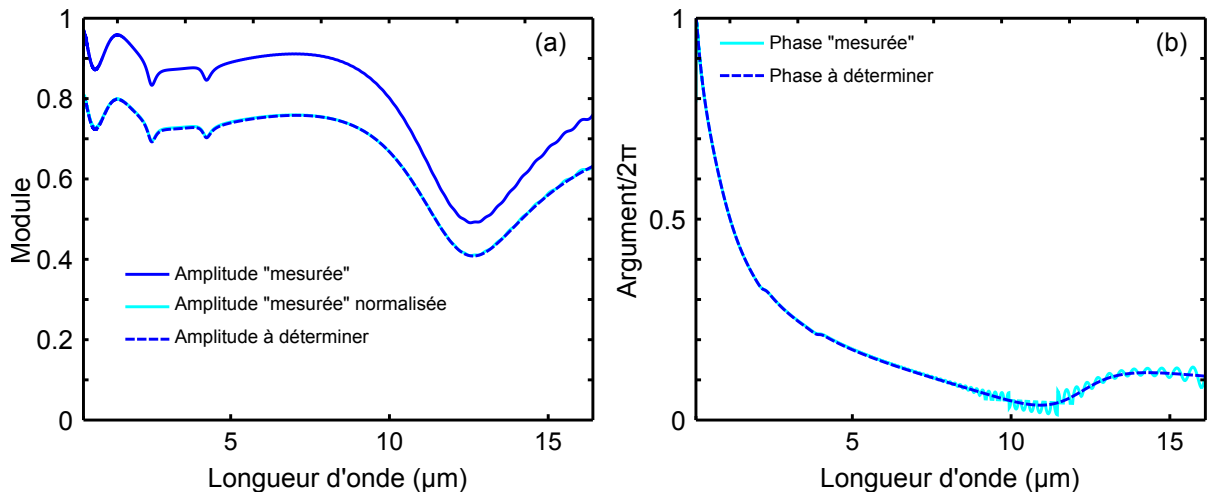
permettant d'extraire la phase à la transmission  $\phi_t$  et les phases à la réflexion  $\phi_r$  ou  $\phi'_r$ .  $k_0$  est le vecteur d'onde dans l'air,  $d$  l'épaisseur de SiNx,  $\delta$  l'épaisseur d'or et  $\Phi_{Au}$  le déphasage à la réflexion sur l'or,

déterminée à partir du modèle de Drude pour l'or ( $\Phi_{Au}$  n'est pas exactement égale à  $-\pi$  car l'or n'est pas un métal parfait) ; en revanche un déphasage de  $-\pi$  à la réflexion sur le substrat est pris en compte dans l'argument du cosinus. Approximer  $\phi_t$  au déphasage  $\phi = k_{z2}d$  associé à la propagation à travers la couche permet de supposer que  $\phi_t$  tend vers 0 quand la longueur d'onde augmente. De même, en remarquant que  $\rho_{d1}^{(3)}$  tend vers  $\tilde{r}_d^{(1)}$ ,  $\phi_r$  et  $\phi'_r$  sont supposés varier autour de  $\pi$ . En revanche, le signe des déphasages ne peut pas être déterminé par cette méthode : les signes des trois arguments sont donc calculés analytiquement en supposant un substrat semi-infini.

Il est finalement possible de comparer  $\tau_{d1}^{(3)}$  et  $\rho_{d1}^{(3)}$  avec les coefficients complexes  $\tau_{d1}^{(4)}$  et  $\rho_{d1}^{(4)}$  ainsi extraits, c'est-à-dire avec  $\sqrt{T_f}e^{i\phi_t}$  d'une part, et  $\sqrt{R_f}e^{i\phi_r}$  et  $\sqrt{R_f}e^{i\phi'_r}$  d'autre part.

### Coefficient complexe de transmission

L'amplitude du coefficient complexe à déterminer  $\tau_{d1}^{(3)}$  est comparée à l'amplitude mesurée  $\sqrt{T_f}$  ; leurs spectres sont tracés sur la figure 3.8(a). La phase à déterminer, égale à l'argument de  $\tau_{d1}^{(3)}$ , est comparée à la phase  $\phi_t$  mesurée (voir figure 3.8(b)). Rappelons que  $\tau_{d1}^{(4)} = \tau_{d1}^{(3)}[1 - \rho_{u1}^{(3)}\tilde{r}_d^{(3)}]^{-1}\tilde{t}_d^{(3)}$ . L'excellent accord entre ces deux phases montre que l'influence des réflexions multiples dans le substrat de verre est négligeable, c'est-à-dire :  $\rho_{u1}^{(3)}\tilde{r}_d^{(3)} \ll 1$ . L'amplitude calculée correspondant à la mesure est ainsi normalisée par l'amplitude de la transmission à l'interface entre le substrat et l'air  $\tilde{t}_d^{(3)}$ . Cette amplitude normalisée présente alors un excellent accord avec l'amplitude du coefficient à déterminer  $\tau_{d1}^{(3)}$ . En conclusion,  $\tau_{d1}^{(3)}$  peut être déterminé en mesurant  $\tau_{d1}^{(4)}$  dans le cas où les réflexions multiples dans le substrat sont négligeables. Il est toutefois nécessaire de normaliser l'amplitude mesurée pour tenir compte de la réfraction à l'interface entre le substrat et l'air. Cette normalisation est différente de celle pratiquée dans la référence [3] où tous les spectres d'intensité mesurés en transmission sont normalisés par la transmission à travers le substrat.



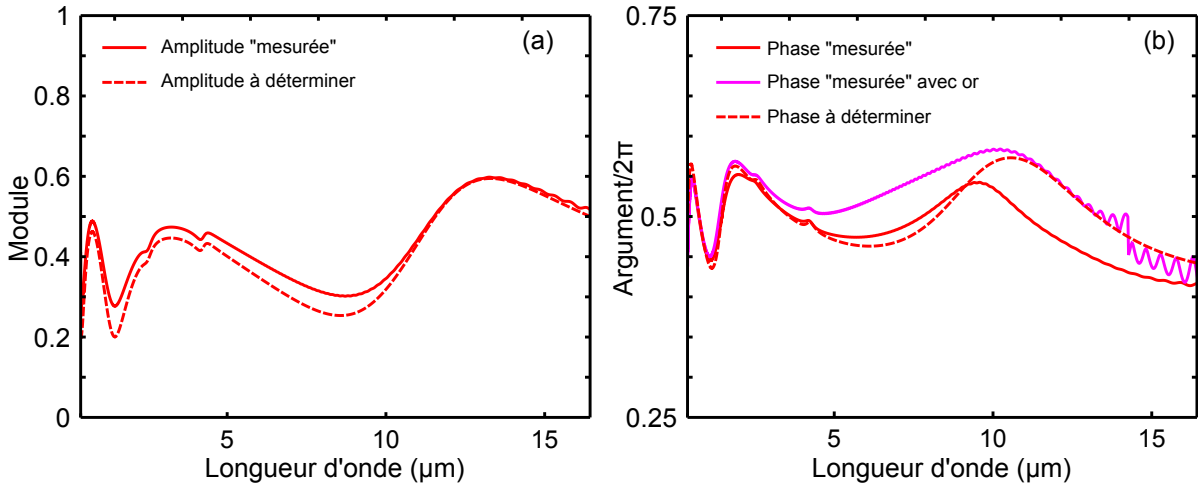
**FIGURE 3.8** – Comparaison du coefficient complexe de transmission à déterminer  $\tau_{d1}^{(3)}$  (traits pointillés) et du coefficient complexe de transmission correspondant à la mesure  $\tau_{d1}^{(4)}$  (traits continus). (a) Modules. (b) Arguments.



### Coefficient complexe de réflexion

La figure 3.9(a) montre la comparaison de l'amplitude du coefficient à déterminer  $\rho_{d1}^{(3)}$  et de l'amplitude mesurée  $\sqrt{R_f}$ . Comme  $\rho_{d1}^{(4)} = \rho_{d1}^{(3)} + \tau_{d1}^{(3)} \tilde{r}_d^{(3)} [1 - \tilde{r}_d^{(3)} \rho_{u1}^{(3)}]^{-1} \tau_{u1}^{(3)}$ , la différence observée entre les deux amplitudes indique que la réflexion à l'interface entre le verre et l'air n'est pas négligeable dans la détermination de l'amplitude complexe de réflexion, c'est-à-dire que  $\tau_{d1}^{(3)} \tilde{r}_d^{(3)} \tau_{u1}^{(3)}$  n'est pas négligeable devant  $\rho_{d1}^{(3)}$ , les réflexions multiples dans le substrat étant néanmoins négligeables. De même, la phase du coefficient  $\rho_{d1}^{(4)}$ , égale à  $\phi_r$  ou  $\phi'_r$  suivant qu'elle est déterminée avec un réseau en SiNx ou un réseau d'or sur une couche de SiNx (cf figure 3.6), diffère de  $\rho_{d1}^{(3)}$  comme le montre la figure 3.9(b)). Changer l'indice du substrat de 1.5 à 3.5 permet de montrer que cette différence est d'autant plus grande que le coefficient  $\tilde{r}_d^{(3)}$  est grand (les calculs effectués avec un substrat en silicium ne sont pas montrés ici ; dans ce cas, la condition  $\rho_{u1}^{(3)} \tilde{r}_d^{(3)} \ll 1$  n'est pas satisfaite, ce qui différencie davantage  $\tau_{d1}^{(4)}$  et  $\rho_{d1}^{(4)}$  de  $\tau_{d1}^{(3)}$  et  $\rho_{d1}^{(3)}$ ). En conclusion, le coefficient  $\rho_{d1}^{(3)}$  est mieux déterminé à partir de  $\rho_{d1}^{(4)}$  dans le cas d'un substrat d'indice faible.

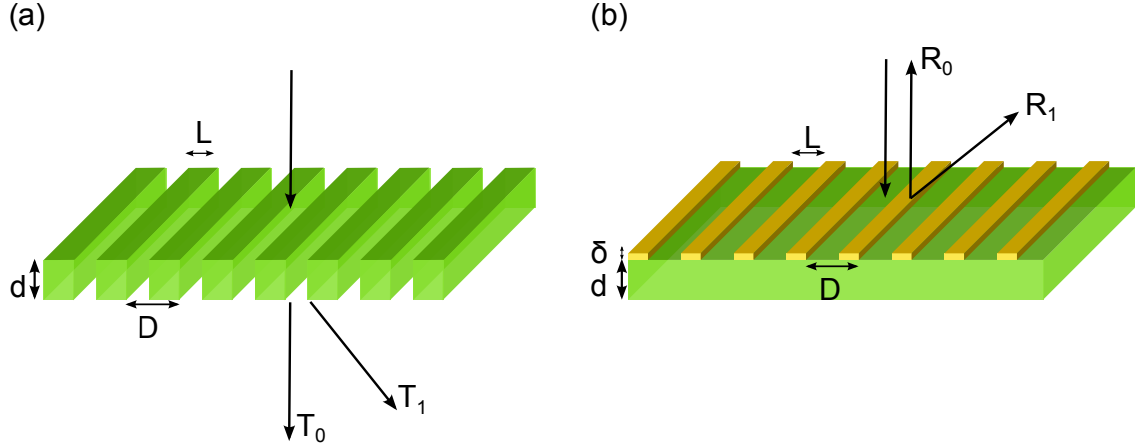
La phase  $\phi'_r$ , obtenue en considérant un réseau d'or sur une couche de SiNx, est préférée à la phase  $\phi_r$  obtenue en considérant un réseau en SiNx beaucoup moins réfléchissant.



**FIGURE 3.9** – Comparaison du coefficient complexe de réflexion à déterminer  $\rho_{d1}^{(3)}$  (traits pointillés) et du coefficient complexe de réflexion correspondant à la mesure  $\rho_{d1}^{(4)}$ , effectuée de deux manières, avec et sans or (traits continus). (a) Modules. (b) Arguments.

#### 3.4.2 La solution des échantillons suspendus

Les échantillons suspendus illustrés sur la figure 3.10 permettent de mesurer effectivement les coefficients  $\tau_{d1}^{(3)}$  et  $\rho_{d1}^{(3)}$  (et non  $\tau_{d1}^{(4)}$  et  $\rho_{d1}^{(4)}$ ) à partir des intensités diffractées  $T_0$ ,  $T_1$ ,  $R_0$  et  $R_1$ , selon le principe exposé dans la section 3.2. Les oscillations hautes fréquences des différents signaux mesurés dues aux réflexions multiples dans le substrat n'existent pas. Pour mesurer le coefficient complexe  $\rho_{d1}^{(3)}$ , il est nécessaire de considérer le réseau d'or en plus du réseau de SiNx. En effet, toutes les intensités réfléchies par le réseau en SiNx dans les différents ordres diffractés, sont proportionnelles à  $|\rho_{d1}^{(3)}|^2$ , ce qui ne permet pas d'extraire d'information sur la phase du coefficient de réflexion  $\rho_{d1}^{(3)}$ .



**FIGURE 3.10** – Schémas des réseaux diffractifs suspendus proposés pour la caractérisation du SiNx par mesure des intensités diffractées  $T_0$ ,  $T_1$ ,  $R_0$  et  $R_1$ . L'épaisseur de la couche de SiNx est  $d = 500$  nm, l'épaisseur du réseau est  $\delta = 200$  nm, la largeur des bandes de SiNx est  $L = 50$   $\mu\text{m}$  et la période des réseaux est  $D = 100$   $\mu\text{m}$ . (a) Réseau suspendu en SiNx. (b) Réseau d'or sur une couche continue suspendue en SiNx.

### 3.5 Incertitudes sur la détermination de la permittivité

Les échantillons suspendus permettent théoriquement de réduire au minimum les erreurs systématiques pour la détermination de la permittivité du SiNx à partir des coefficients  $\tau_{d1}^{(3)}$  et  $\rho_{d1}^{(3)}$  au lieu de  $\tau_{d1}^{(4)}$  et  $\rho_{d1}^{(4)}$ . Je cherche maintenant à calculer l'incertitude sur la permittivité mesurée. Je considère des échantillons suspendus, c'est-à-dire les échantillons de la figure 3.10. L'incertitude est déterminée par une méthode statistique [15]. Je suppose que l'incertitude sur les mesures d'intensité est de 2% sur tout le spectre d'étude, et qu'elle est due uniquement aux erreurs aléatoires pouvant provenir par exemple du bruit ou du traitement mathématique du signal par le spectromètre FTIR. Pour calculer l'incertitude sur la permittivité, je simule à chaque longueur d'onde  $\lambda$  comprise entre 1 et 16  $\mu\text{m}$  2000 combinaisons des quatre intensités  $T_0(\lambda)$ ,  $T_1(\lambda)$ ,  $R_0(\lambda)$  et  $R_1(\lambda)$  (2000 coïncide avec le nombre de scans lors des mesures au spectromètre FTIR). Chacune des quatre distributions d'effectifs 2000 suit une loi normale ; par exemple la première distribution a une moyenne  $T_0(\lambda)$  et un écart-type  $0.02T_0(\lambda)$ . L'algorithme d'inversion est appliqué à chacune 2000 combinaisons  $(T_0(\lambda), T_1(\lambda), R_0(\lambda), R_1(\lambda))$ . Les distributions des parties réelle et imaginaire de la permittivité est ainsi tracée sur la figure 3.11(b) à  $\lambda_1 = 4$   $\mu\text{m}$  et  $\lambda_2 = 15.6$   $\mu\text{m}$ . Pour chaque longueur d'onde  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$ , j'ai montré que les distributions des parties réelle et imaginaire de la permittivité suivent également une loi normale. A  $\lambda_1$  une valeur moyenne  $\bar{\epsilon}_1 = \bar{\epsilon}'_1 + i\bar{\epsilon}''_1$  est déduite des deux distributions d'écarts-type  $\sigma'_1$  et  $\sigma''_1$ .

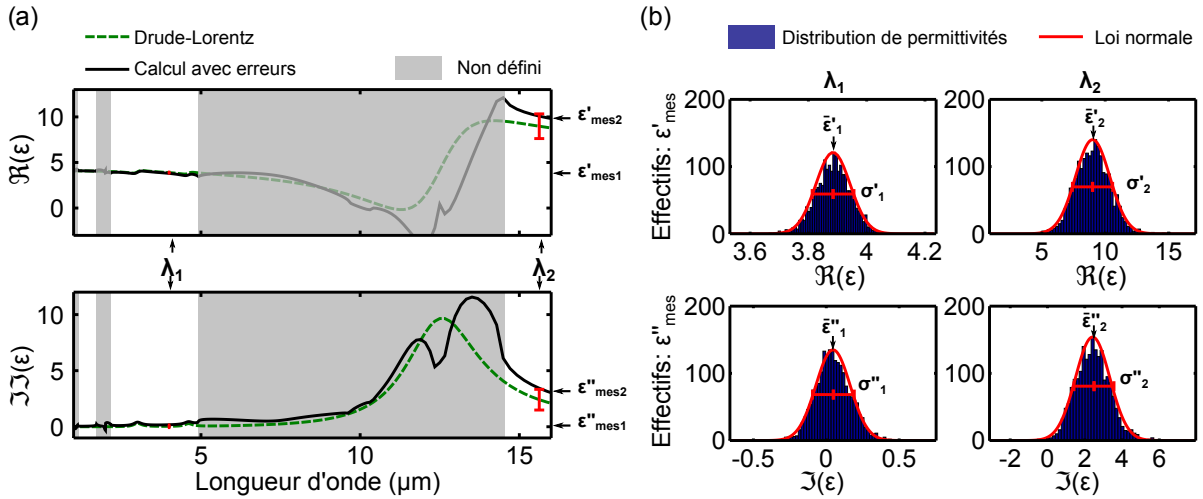
D'autre part, j'applique l'algorithme à un cas théorique avec des erreurs systématiques :

- $T_0 - 1\%T_0$
- $T_1 - 1\%T_1$
- $R_0 - 2\%R_0$
- $R_1 - 2\%R_1$

Le spectre de permittivité obtenu est tracé sur la figure 3.11(a) et comparé avec le spectre de la permittivité de départ donnée par le modèle de Drude-Lorentz. Le résultat de l'extraction est non défini quand la racine  $a_t''$  ou la racine  $a_r''$  intervenant dans la résolution du problème est la racine d'un nombre négatif (cf équation 3.9). Une bonne correspondance est observée entre les permittivités du modèle et celle extraite par la "mesure" avec des erreurs. A  $\lambda_1$ , la permittivité extraite est  $\epsilon_{mes1} = \epsilon'_{mes1} + i\epsilon''_{mes1}$ .

L'incertitude sur les mesures est supposée égale à 1 écart-type. J'établis que  $|\bar{\epsilon}'_1 - \epsilon'_{mes1}| \approx 1.3\sigma'_1$  et  $|\bar{\epsilon}''_1 - \epsilon''_{mes1}| \approx 1.3\sigma''_1$ . La loi de probabilité étant normale, les chances que cette mesure se produise sont de l'ordre de 15%. La mesure est donc acceptable. A  $\lambda_1$ , le résultat de la mesure s'écrit finalement  $\epsilon_{mes1} = (3.80 + 0.2i) \pm (0.06 + 0.1i)$ . Les erreurs systématiques sur les entrées de l'algorithme sont négligeables. Il est possible que ces erreurs se compensent entre elles. J'évalue quand même la précision nécessaire pour la mesure de  $T_0$ ,  $T_1$ ,  $R_0$  et  $R_1$  aux erreurs utilisées dans le calcul précédent, soit 1 à 2%. Enfin, une bonne précision de mesure de réduire les plages de longueurs d'onde où le résultat n'est pas défini. La présence de ces zones donnera ainsi une indication de la précision des mesures d'intensités effectuées au spectromètre FTIR.

A  $\lambda_2$ ,  $\epsilon_{mes2} = (10 + 3.4i) \pm (1 + 0.9i)$ . L'incertitude  $\sigma'_2 = 1$  sur la partie réelle  $\epsilon'_{mes2}$  est environ 10 fois plus grande que l'incertitude  $\sigma'_1 = 0.06$  sur la partie réelle  $\epsilon'_{mes1}$ . L'origine de cette incertitude importante peut être la condition  $d \ll \lambda_2$ ,  $d$  étant l'épaisseur de la couche de SiNx ( $d = 500$  nm) : plus le rapport  $d/\lambda$  est faible, moins la mesure des coefficients complexes est précise.



**FIGURE 3.11** – (a) Spectres des parties réelles et imaginaires de la permittivité du SiNx déterminée avec le modèle de Drude-Lorentz (trait pointillés vert) et la permittivité extraite par l'algorithme d'inversion en introduisant des erreurs systématiques en entrée (trait continu noirs). (b) Évaluation de l'incertitude sur la mesure de permittivité du SiNx de façon statistique. Les distributions gaussiennes des données d'entrée de l'algorithme générées pour rendre compte des erreurs aléatoires entraînent des distributions gaussiennes de permittivités en sortie, caractérisées par des moyennes et écarts-type ; l'incertitude sur les parties réelles et imaginaires sera supposée égale à l'écart-type de la distribution.

### 3.6 Conclusion

Dans ce chapitre, j'ai expliqué le principe de la détermination expérimentale de coefficients complexes de transmission et réflexion à l'aide de réseaux diffractifs. La méthode consiste à mesurer les intensités diffractées par des réseaux constitués du matériau à caractériser. Ces coefficients complexes peuvent ensuite être inversés pour déterminer éventuellement l'indice de réfraction d'un matériau isotrope ou caractériser un matériau anisotrope. En prenant l'exemple du nitrure de silicium comme matériau à analyser, j'ai étudié pour la première fois l'influence du substrat dans ce problème d'inversion. J'ai montré que les amplitudes complexes nécessaires pour l'extraction de l'indice ne peuvent pas être obtenues en présence d'un substrat, même d'indice faible. Des échantillons suspendus doivent donc nécessairement être utilisés pour permettre à l'algorithme d'inversion de converger vers l'indice de réfraction recherché. L'incertitude sur la permittivité du SiNx est évaluée statistiquement. D'autre part, j'ai montré que des erreurs systématiques de 1 et 2% dans les mesures d'intensités diffractées par les réseaux pouvaient être négligées. Cependant, améliorer la précision des mesures permet de limiter l'étendue des plages de longueurs d'onde pour lesquelles le résultat de l'inversion est non défini. Cela permet aussi d'obtenir une permittivité mesurée proche de la valeur vraie.

A la suite de cette étude théorique, la détermination expérimentale d'amplitudes complexes pour des échantillons suspendus fera l'objet du chapitre 4.

### Références

- [1] D. R. Smith, S. Schultz, P. Markoš, and C. M. Soukoulis, "Determination of effective permittivity and permeability of metamaterials from reflection and transmission coefficients," *Phys. Rev. B* **65**, 195104 (2002).
- [2] C. Menzel, C. Rockstuhl, T. Paul, F. Lederer, and T. Pertsch, "Retrieving effective parameters for metamaterials at oblique incidence," *Phys. Rev. B* **77**, 195328 (2008).
- [3] S. Zhang, W. Fan, N. C. Panoiu, K. J. Malloy, R. M. Osgood, and S. R. J. Brueck, "Experimental demonstration of near-infrared negative-index metamaterials," *Phys. Rev. Lett.* **95**, 137404 (2005).
- [4] B. Kanté, J.-M. Lourtioz, and A. de Lustrac, "Infrared metafilms on a dielectric substrate," *Phys. Rev. B* **80**, 205120 (2009).
- [5] B. Kanté, "Les métamatériaux, des micro-ondes à l'optique, théorie et applications," *Ann. Phys.* **34**, 1–120 (2009).
- [6] L. Li, "Formulation and comparison of two recursive matrix algorithms for modeling layered diffraction gratings," *J. Opt. Soc. Am. A* **13**, 1024–1035 (1996).
- [7] L. Novotny and B. Hecht, *Principles of Nano-Optics*, Principles of Nano-optics (Cambridge University Press, 2006).
- [8] P. Yeh, *Optical waves in layered media*, Wiley series in pure and applied optics (Wiley, 2005).
- [9] M. Born and E. Wolf, *Principles of optics : electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light* (CUP Archive, 1999).

- [10] L. Hu and S. T. Chui, “Characteristics of electromagnetic wave propagation in uniaxially anisotropic left-handed materials,” *Phys. Rev. B* **66**, 085108 (2002).
- [11] D. R. Smith and D. Schurig, “Electromagnetic wave propagation in media with indefinite permittivity and permeability tensors,” *Phys. Rev. Lett.* **90**, 077405 (2003).
- [12] Y. Liu, G. Bartal, and X. Zhang, “All-angle negative refraction and imaging in a bulk medium made of metallic nanowires in the visible region,” *Opt. Express* **16**, 15439–15448 (2008).
- [13] A. Fang, T. Koschny, and C. M. Soukoulis, “Optical anisotropic metamaterials : Negative refraction and focusing,” *Phys. Rev. B* **79**, 245127 (2009).
- [14] P. Ghenuche, G. Vincent, M. Laroche, N. Bardou, R. Haïdar, J.-L. Pelouard, and S. Collin, “Optical extinction in a single layer of nanorods,” *Phys. Rev. Lett.* **109**, 143903 (2012).
- [15] J. Taylor, *Incertitudes et analyse des erreurs dans les mesures physiques*, 2nd edn. Dunod (Masson Sciences, Paris, 2000).



## Chapitre 4

# Application : caractérisation de matériaux isotropes conventionnels

Dans ce chapitre, la méthode de détermination d'amplitudes complexes à l'aide de réseaux diffractifs décrite dans le chapitre 3 est appliquée expérimentalement à la caractérisation d'échantillons suspendus en nitrure de silicium. Les procédés de fabrication de ces échantillons sont expliqués. Les mesures d'ordres diffractés sont réalisées avec un montage de spectroscopie FTIR permettant des mesures résolues en angle dans le proche et le moyen infrarouge. Les coefficients de réflexion et de transmission  $r$  et  $t$  sont extraits à partir des ordres diffractés. La possibilité d'appliquer cette méthode à la caractérisation du silicium est également démontrée.

### 4.1 Introduction

La méthode expérimentale de détermination de coefficients complexes à partir d'ordres diffractés est appliqué à des échantillons suspendus afin d'éviter l'influence du substrat lors de l'inversion, contrairement à ce qui a été fait jusqu'alors [1–3]. J'ai donc fabriqué des échantillons suspendus en SiNx, dans le but d'appliquer la méthode en n'étant supposée connaître que l'épaisseur de SiNx, et de finalement extraire sa permittivité. Les intensités diffractées par les réseaux dans les différents ordres sont déterminées à l'aide d'un montage expérimental permettant de réaliser des mesures résolues en angle sur la gamme de longueurs d'onde 1 – 16  $\mu\text{m}$ . La précision des mesures d'intensités diffractées est évaluée non pas en les comparant à des calculs de réponses optiques, mais en les comparant entre elles. Les facteurs influençant la précision des mesures sont identifiés, parmi lesquels les procédés de fabrication et les échantillons eux mêmes. L'application de la méthode au silicium est finalisation étudiée pour contourner les inconvénients du SiNx : fragilité des membranes et inhomogénéité de l'épaisseur due au procédé de fabrication.

### 4.2 Fabrication d'échantillons suspendus en nitrure de silicium

Trois types d'échantillons suspendus en SiNx sont fabriqués :

- une membrane non structurée,
- un réseau diffractif,

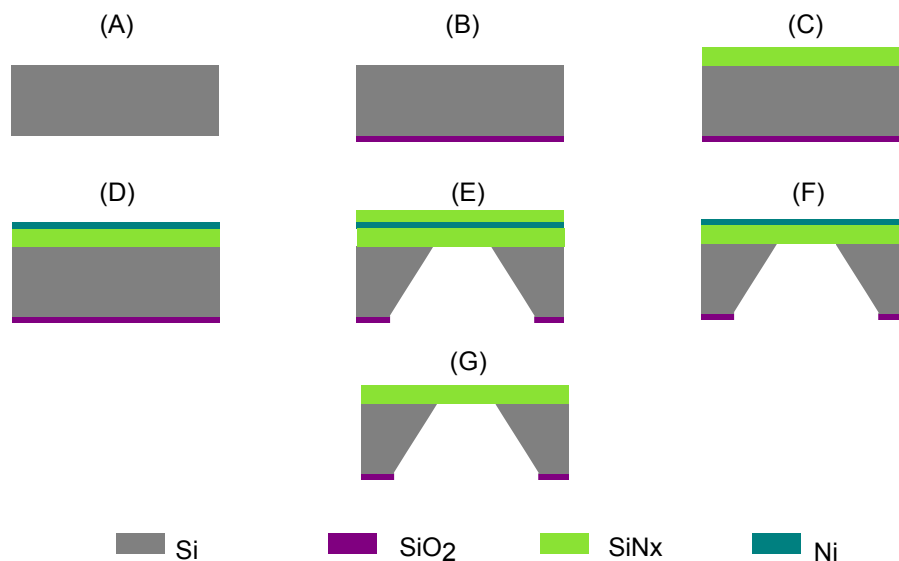
- un réseau diffractif d'or sur une membrane non structurée,

selon trois procédés représentés sur les figures 4.1, 4.2 et 4.3. Ces procédés sont dérivés de celui développé par Grégory Vincent *et al.* pour la fabrication de réseaux suspendus à base de nitrure de silicium [4]. Plusieurs étapes sont communes à ces trois procédés : à partir d'un substrat en silicium (étape (A)), une couche de silice est formée par oxydation thermique du silicium (étape (B)). Une couche de SiNx est déposée sur un substrat de silicium (étape (C)) ; un masque métallique est ensuite structuré par lithographie UV et lift-off du métal (étape (D)) ; la membrane est finalement libérée par gravure chimique du substrat de silicium (étape (E)).

Les membranes non structurées et les réseaux suspendus sont généralement réalisés sur le même échantillon ; les réseaux d'or sur membrane non structurée sont fabriqués sur un échantillon à part.

### Procédé de fabrication d'une membrane non structurée en SiNx

Pour une membrane non structurée de SiNx, le masque métallique est en fait une couche continue de nickel (pas de lift-off de métal sur cette zone) qui sert de couche d'arrêt à la gravure plasma de la couche protectrice de SiNx après gravure du substrat (étape (F) sur la figure 4.1). Une membrane en SiNx est finalement obtenue en retirant le masque de nickel à l'aide d'une solution d'acide nitrique (étape (G)).



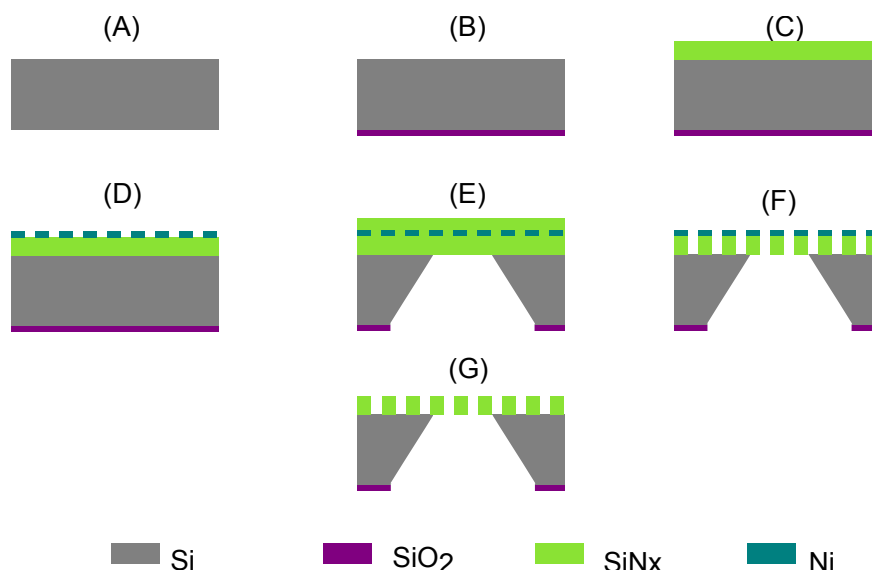
**FIGURE 4.1** – Procédé de fabrication d'une membrane non structurée. (A) Substrat de silicium orienté  $\langle 100 \rangle$  de  $300 \mu\text{m}$  d'épaisseur. (B) Formation d'une couche de  $250 \text{ nm}$  d'épaisseur de silice par oxydation thermique du silicium. (C) Dépôt d'une couche de SiNx par PECVD. (D) Dépôt d'une couche d'arrêt de nickel de  $100 \text{ nm}$  d'épaisseur par évaporation. (E) Dépôt d'une couche protectrice de SiNx par PECVD et gravure du substrat de silicium par une solution de TMAH. (F) Gravure plasma de la couche protectrice. (G) Retrait de la couche de Ni à l'acide nitrique.

### Procédé de fabrication d'un réseau de SiNx suspendu

Dans le cas de la fabrication d'un réseau suspendu, le masque de nickel structuré sert de masque de gravure lors de la structuration du SiNx par gravure plasma (étape (F) sur la figure 4.2) après gravure



du substrat. L'étape (G) consiste également à retirer le masque de nickel avec de l'acide nitrique.



**FIGURE 4.2** – Procédé de fabrication d'un réseau suspendu. (A) Substrat de silicium orienté  $\langle 100 \rangle$  de  $300 \mu\text{m}$  d'épaisseur. (B) Formation d'une couche de  $250 \text{ nm}$  d'épaisseur de silice par oxydation thermique du silicium. (C) Dépôt d'une couche de  $\text{SiNx}$  par PECVD. (D) Structuration du masque nickel de  $100 \text{ nm}$  d'épaisseur par lithographie et lift-off. (E) Dépôt d'une couche protectrice de  $\text{SiNx}$  par PECVD et gravure du substrat de silicium par une solution de TMAH. (F) Structuration du réseau de  $\text{SiNx}$  par gravure plasma. (G) Retrait du masque de Ni à l'acide nitrique.

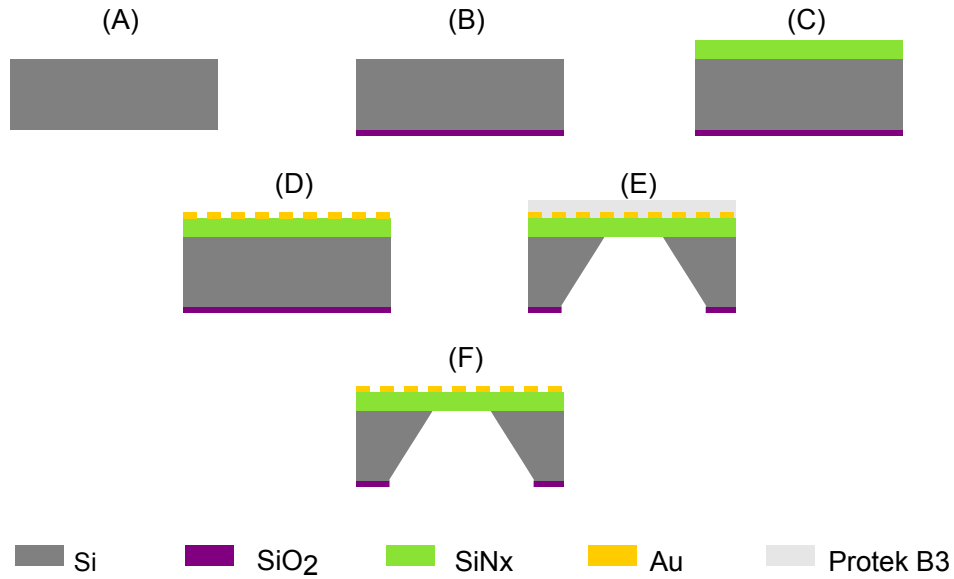
#### Procédé de fabrication d'un réseau d'or sur une membrane non structurée

Le réseau d'or, réalisé par dépôt puis lift-off d'or (étape (D) sur la figure 4.3), est protégé par une couche de résine commerciale Protek B3 lors de la gravure du substrat (étape (E)). Cette couche protectrice est finalement enlevée à l'aide d'un solvant proposé à l'achat avec la résine.

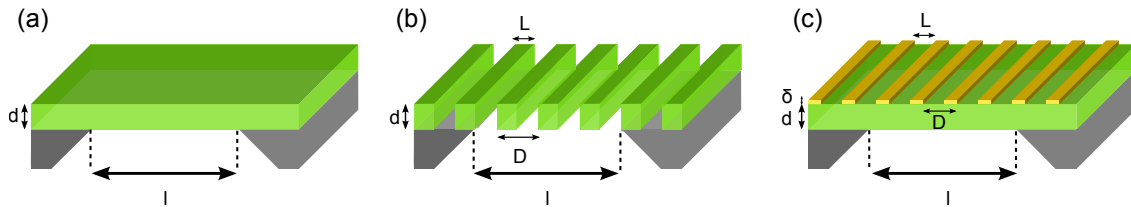
La membrane non structurée, le réseau suspendu et le réseau d'or sur membrane qui seront considérés par la suite ont tous la même épaisseur nominale de  $\text{SiNx}$   $d = 500 \text{ nm}$  et sont définis sur des ouvertures carrées de  $l = 2 \text{ mm}$  de côté environ. Les dimensions de ces échantillons suspendus disponibles représentés sur la figure 4.4 sont résumées dans le tableau 4.1. L'épaisseur de  $\text{SiNx}$  indiquée est celle spécifiée lors du dépôt de PECVD et l'épaisseur est l'épaisseur nominale du dépôt métallique. Les largeurs  $L$  et les périodes  $D$  des réseaux correspondent aux dimensions du masque utilisé pour la lithographie UV.

Échantillon	$d \text{ nm}$	$\delta \text{ nm}$	$L \mu\text{m}$	$D \mu\text{m}$	$l \text{ mm}$
membrane non structurée de $\text{SiNx}$	500	-	-	-	2
réseau suspendu de $\text{SiNx}$	500	-	50	100	2
réseau d'or sur membrane non structurée en $\text{SiNx}$	500	200	25	50	2

**Tableau 4.1** – Dimensions des échantillons suspendus en  $\text{SiNx}$  disponibles : largeur de bande  $L$  et période  $D$  des réseaux, épaisseurs  $\delta$  et  $d$  d'or et de  $\text{SiNx}$  et largeur  $l$  des ouvertures dans le substrat de silicium.



**FIGURE 4.3** – Procédé de fabrication d'un réseau d'or sur membrane non structurée. (A) Substrat de silicium orienté  $\langle 100 \rangle$  de  $300 \mu\text{m}$  d'épaisseur. (B) Formation d'une couche de  $250 \text{ nm}$  d'épaisseur de silice par oxydation thermique du silicium. (C) Dépôt d'une couche de SiNx par PECVD. (D) Structuration du réseau d'or par lithographie et lift-off. (E) Protection de la couche de SiNx par Protek B3 et gravure du substrat de silicium par une solution de TMAH. (F) Retrait de la couche protectrice de Protek B3.



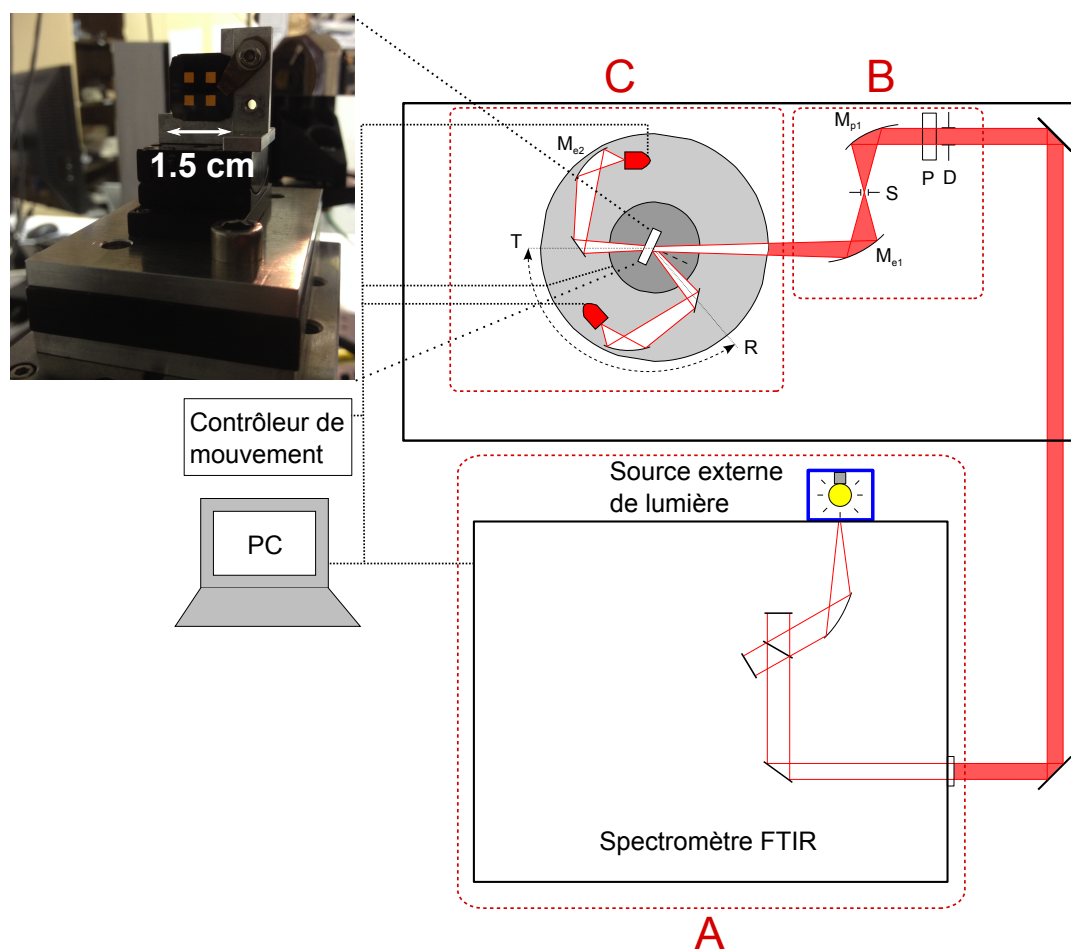
**FIGURE 4.4** – Schémas des trois types d'échantillons fabriqués. (a) Membrane non structurée de SiNx d'épaisseur  $d$ . (b) Réseau suspendu de SiNx d'épaisseur  $d$  de période  $D$  et de bande de largeur  $L$ . (c) Réseau d'or de période  $D$  d'épaisseur  $\delta$ , d'épaisseur de SiNx  $d$  et de largeur de bande de SiNx  $L$ .

### 4.3 Mesures en transmission et réflexion résolues en angle

Le montage GonioVISIR développé par Cyrille Billaudeau au cours de sa thèse [5, 6] permet de réaliser des mesures d'intensités en transmission et réflexion par spectrométrie FTIR à différents angles d'incidence et sous lumière incidente polarisée. En plus des mesures de transmission et réflexion spéculaires, il permet de déterminer les intensités diffractées dans les différents ordres par les réseaux décrits dans la section 4.2.

#### 4.3.1 Montage expérimental

Le montage expérimental est composé de trois blocs A, B et C définis sur la figure 4.5 :



**FIGURE 4.5** – Schéma du montage GonioVISIR pour des mesures en transmission et réflexion résolues en angle composé de trois blocs A, B et C. Les échantillons, généralement carrés de côté 1.5 cm, contiennent typiquement quatre membranes ou réseaux suspendus de taille  $2 \times 2$  mm (cf photo). (A) Source de lumière et spectromètre FTIR. (B) Système de focalisation de la lumière. (C) Plate-forme rotative motorisée.

- A- **la source** : le spectromètre infrarouge consiste en un interféromètre qui permet de décomposer spectralement le signal de la source de lumière large bande avec une résolution de  $\Delta\sigma = 20 \text{ cm}^{-1}$  pour ces mesures ; les opérations de transformée de Fourier sont effectuées par un logiciel au fur et à mesure de l'acquisition ; 2000 scans, correspondant à des allers-retours du miroir mobile de l'interféromètre de Michelson, sont sélectionnés dans les paramètres de mesure.
- B- **le système de focalisation** : un système optique composé d'un miroir parabolique  $M_{p1}$  de focale 69 mm et d'un miroir elliptique  $M_{e1}$  de focale 40 mm permet de focaliser le faisceau incident sur l'échantillon. L'image d'un diaphragme  $S$  de diamètre  $250 \mu\text{m}$  placé entre les deux miroirs forme une tache de diamètre  $\varnothing \sim 1.7 \text{ mm}$  sur l'échantillon. En amont des miroirs, un diaphragme  $D$  ajuste la résolution angulaire ; la polarisation est contrôlée par un polariseur en KRS-5.
- C- **le système de collection** : un ensemble de deux platines rotatives motorisées d'axes concentriques permet d'effectuer les mesures soit dans une configuration de transmission (T), soit dans une configuration de réflexion (R) ; en faisant varier l'angle de collection indépendamment de l'angle d'incidence, il est ainsi possible d'accéder à des mesures de transmission et de réflexion non spéculaires.

Utiliser un détecteur à antimoniure d'indium (InSb) donne accès à la gamme de mesure  $1 - 5.5 \mu\text{m}$  et un détecteur à Mercure Cadmium Tellure (MCT) à la gamme  $3 - 16 \mu\text{m}$ .

Ce montage, n'utilisant que des optiques à miroirs, est achromatique ; en effet il donne la possibilité de réaliser des mesures sur la gamme  $1 - 16 \mu\text{m}$  en n'étant limité que par les choix des polariseurs et des détecteurs (InSb ou MCT).

#### 4.3.2 Traitement des données expérimentales

Les mesures d'intensités non spéculaires sont réalisées en fixant l'angle d'incidence et en faisant varier l'angle de collection de l'intensité diffractée par le réseau. L'exemple du réseau suspendu est pris pour montrer comment les intensités diffractées dans chacun des ordres sont ensuite extraites à partir des intensités diffractées dans toutes les directions.

Le réseau est éclairé à incidence normale et le faisceau incident est polarisé  $TE$ . L'objectif est de mesurer les intensités  $T_0$ ,  $T_1$  et  $T_{-1}$  des ordres 0, 1 et  $-1$  sur la gamme  $1 - 5.5 \mu\text{m}$ . La période du réseau étant de  $D = 100 \mu\text{m}$ , balayer les angles de collection entre  $-3.5^\circ$  et  $3.5^\circ$  permet d'obtenir les intensités  $T_1$  et  $T_{-1}$  sur l'ensemble de la gamme spectrale (par application de la formule du réseau  $\theta_{max} = \arcsin(\frac{\lambda_{max}}{D})$  soit environ  $3.2^\circ$ ). Un pas angulaire de  $0.1^\circ$  est choisi.

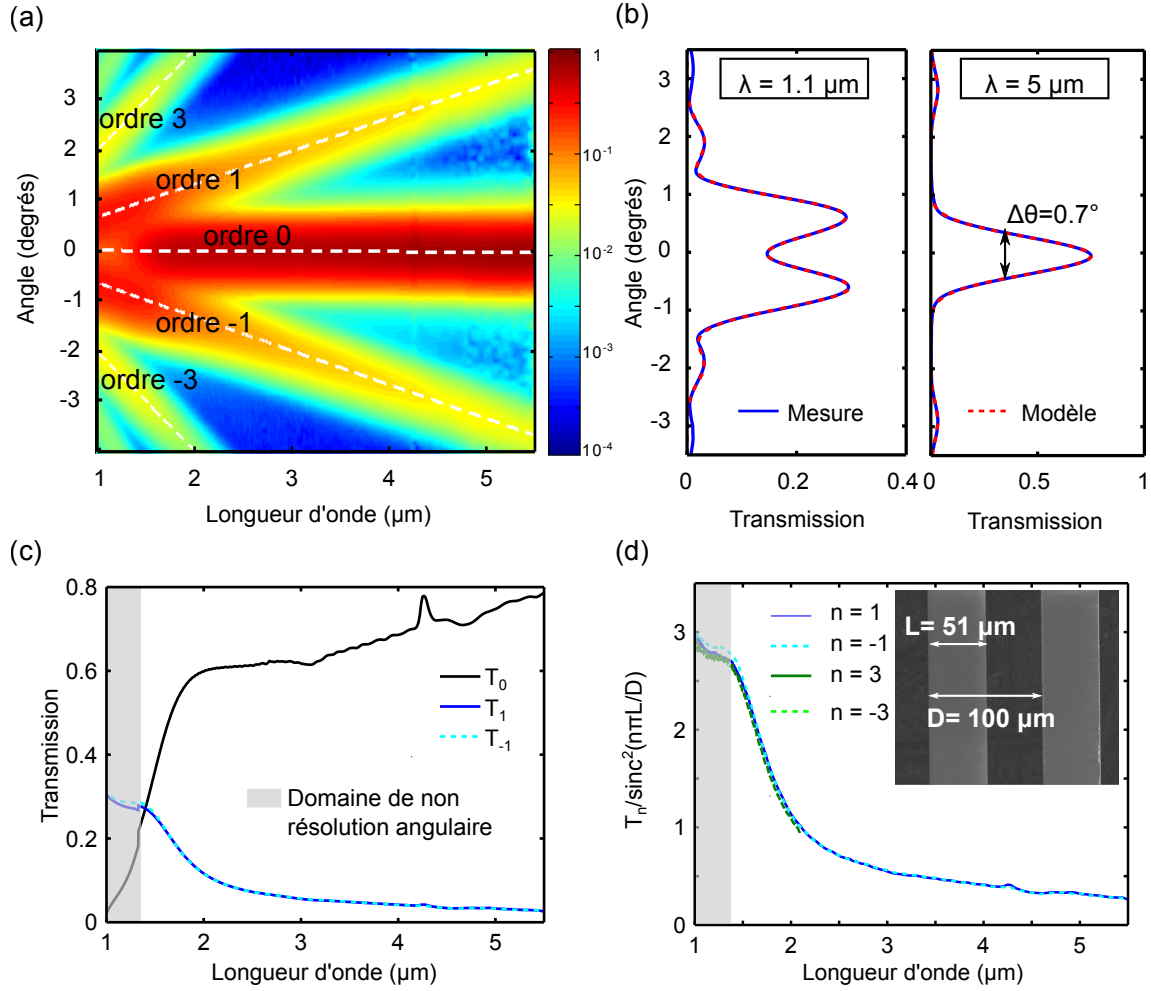
La figure 4.6 (a) montre la distribution de l'intensité diffractée par le réseau en transmission pour les longueurs d'onde de la gamme  $1 - 5.5 \mu\text{m}$  et les angles de collection entre  $-3.5^\circ$  et  $3.5^\circ$ . Les ordres  $-3$ ,  $-1$ ,  $0$ ,  $+1$  et  $+3$  sont observés. Pour le réseau considéré  $L/D \approx 0.5$ , les ordres d'indices pairs  $-4$ ,  $-2$ ,  $+2$  et  $+4$  ne soient donc pas visibles. En effet, l'intensité  $T_n$  diffractée dans un ordre d'indice  $n$  est proportionnelle à  $\sin(\frac{\pi n L}{D})$  (cf équations 3.5) et donc nulle dans le cas où  $n$  est pair (les ordres diffractés pairs sont évanescents quelle que soit la longueur d'onde).

Pour chaque longueur d'onde  $\lambda$  de l'intervalle  $2 - 5.5 \mu\text{m}$  pour l'ordre 0, de l'intervalle  $2 - 5 \mu\text{m}$  pour les ordres  $-1$  et  $1$  et de l'intervalle  $1.25 - 1.75 \mu\text{m}$  pour les ordres  $-3$  et  $3$ , la direction  $\theta_n$  des maxima d'intensité correspondant à l'ordre  $n$  est recherchée entre  $\frac{180}{\pi} \arcsin(\frac{n\lambda}{D}) - 0.5^\circ$  et  $\frac{180}{\pi} \arcsin(\frac{n\lambda}{D}) + 0.5^\circ$ . Pour les ordres  $-3$ ,  $-1$ ,  $0$ ,  $+1$  et  $+3$ , on cherche  $\theta_n$  selon le modèle  $\sin \theta_n = a_n + b_n \lambda$ . Les résultats de ces régressions linéaires sont résumés dans le tableau 4.2.

Ordres $n$	$(180/\pi) \arcsin(a_n)$ (en degré)	$n/b_n$ (en $\mu\text{m}$ )
$-3$	0.0	101
$-1$	0.0	98
0	0.0	0
1	0.0	100
3	0.0	98

**Tableau 4.2** – Résultats de la recherche de corrélation linéaire pour le modèle  $\sin \theta_n = a_n + b_n \lambda$  appliqué aux ordres  $n = -3, -1, 0, 1$  et  $3$ .

Ces résultats montrent que les mesures expérimentales sont en accord avec la formule du réseau  $\sin \theta_n = \sin \theta_i + n \frac{\lambda}{D}$  pour un angle d'incidence  $\theta_i = 0^\circ$ , et correspondent bien avec l'échantillon. En effet, pour un pas angulaire de  $0.1^\circ$ , on peut considérer que  $(180/\pi) \arcsin(a_n)$  est égal à  $\theta_i$  pour tous les ordres. De même, en estimant la résolution de la lithographie UV à  $5 \text{ nm}$ , on peut considérer que  $n/b_n$  est égal à  $1/D$  pour tous les ordres. Les courbes pointillées sur la figure 4.6 (a) sont les droites



**FIGURE 4.6** – Intensité diffractée en transmission par le réseau suspendu en SiNx. (a) Distribution de l'intensité diffractée par le réseau en transmission sur la gamme 1 – 5.5 μm et les angles de collection entre –3.5° et 3.5°. (b) Transmission en fonction de l'angle de collection entre –3.5° et 3.5° à λ = 1.1 et λ = 5 μm : données expérimentales (lignes continues bleues) et modèle de superposition de fonctions gaussiennes (lignes pointillées rouges). (c) Spectres des intensités T<sub>0</sub> (ligne noire), T<sub>1</sub> (ligne continue bleue) et T<sub>-1</sub> (ligne pointillée bleu cyan) sur la gamme 1 – 5.5 μm. (d) Quantité T<sub>n</sub>/sinc<sup>2</sup>( $\frac{\pi n L}{D}$ ) pour les ordres –3, –1, 1 et 3, avec le rapport L/D extrait de l'image MEB du réseau suspendu en encart.

dont les coefficients sont déterminés par la régression linéaires.

Le profil d'intensité en fonction de l'angle de collection à λ = 5 μm est comparé à la superposition de trois fonctions gaussiennes (cf figure 4.6 (b)). Chaque fonction gaussienne est définie par son maximum, sa largeur à mi-hauteur et son centre, ces trois paramètres étant optimisés pour obtenir le meilleur accord entre le modèle et les données expérimentales. La largeur à mi-hauteur du pic central du profil à λ = 5 μm permet de définir la résolution angulaire du montage : Δθ = 0.7°. Ainsi, un écart angulaire entre les pics des ordres 0 et 1 inférieur à Δθ définit le domaine de non résolution angulaire λ < λ<sub>res</sub>, avec λ<sub>res</sub> = 1.25 μm dans ce cas.

Pour λ > λ<sub>res</sub>, les intensités T<sub>n</sub> sont extraites pour chaque longueur d'onde λ par interpolation des profils d'intensités en fonction de l'angle de collection afin de trouver l'intensité diffractée dans la direction donnée par sin θ<sub>n</sub> = a<sub>n</sub> + b<sub>n</sub>λ (a<sub>n</sub> et b<sub>n</sub> sont alors repris du tableau 4.2).

Dans le domaine de non résolution angulaire, une déconvolution angulaire est effectuée : la correspondance entre un modèle à cinq fonctions gaussiennes et les profils d'intensités en fonction de l'angle de collection : les intensités  $T_{-3}$ ,  $T_{-1}$ ,  $T_0$ ,  $T_1$  et  $T_3$  à chaque longueur d'onde sont alors extraites comme les maxima de ces fonctions gaussiennes. Malgré la limite de résolution angulaire, un excellent accord est observé entre le profil expérimental et le modèle superposant les cinq gaussiennes à  $\lambda = 1.1 \mu\text{m}$ . La figure 4.6 (c) présente les spectres des intensités  $T_{-3}$ ,  $T_{-1}$ ,  $T_0$ ,  $T_1$  et  $T_3$  sur la gamme  $1 - 5.5 \mu\text{m}$ . Les données pour  $T_{-3}$  et  $T_3$  ne sont pas disponibles pour  $\lambda > 2 \mu\text{m}$ . Les spectres de  $T_1$  et  $T_{-1}$  sont quasiment confondus ; cela indique un bon alignement du montage qui permet d'observer la symétrie par rapport à  $\theta_i = 0^\circ$  attendue pour la figure de diffraction à incidence normale.

La figure 4.6 (d) montre de plus la proportionnalité des intensités  $T_n$  entre elles pour  $n \neq 0$ . En fait, la quantité  $T_n / \text{sinc}^2(\frac{\pi n L}{D})$  est presque la même pour tous les ordres  $n \neq 0$ , en accord avec les équations 3.5 qui donnent les expressions analytiques pour les intensités  $T_n$ . Cela indique un accord entre le modèle théorique, les données expérimentales et l'échantillon, le rapport  $L/D = 0.51$  réel étant extrait à partir d'une image du réseau par microscopie électronique à balayage.

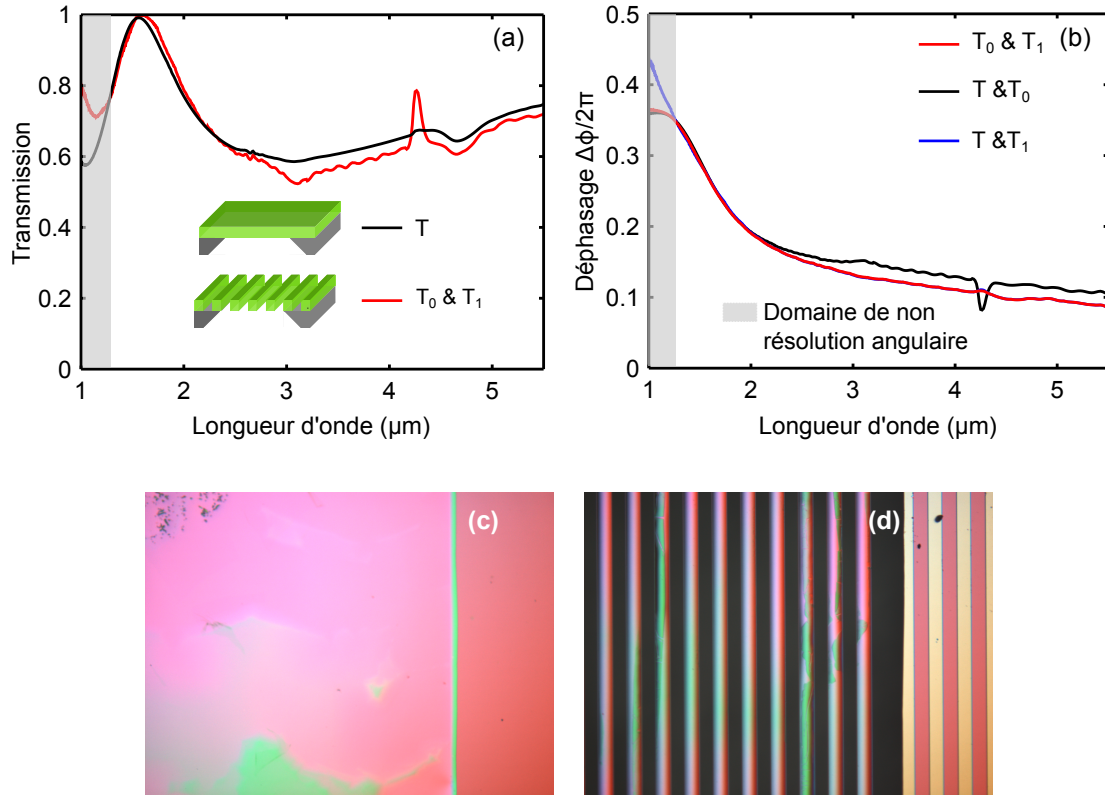
## 4.4 Résultats

Les intensités diffractées dans les différents ordres par le réseau suspendu en SiNx et le réseau d'or sur membrane non structurée sont maintenant inversées pour déterminer les coefficients de transmission et de réflexion complexes  $t$  et  $r$  associés à une lame de SiNx d'épaisseur  $d$ . Les coefficients obtenus ne sont pas comparés à des coefficients calculés pour lesquels une modélisation de l'indice du SiNx est nécessaire. En effet, l'indice du SiNx dépend fortement du ration Si/N mais également de la concentration d'hydrogène et de la densité [7]. On évite ainsi de prendre en compte des facteurs expérimentaux non connus comme la stœchiométrie du SiNx, d'autant que les spectres de transmission en annexe A.1 permettent de mettre en évidence la gravure chimique des couches de SiNx au cours du procédé de fabrication : il est par exemple possible que cette attaque chimique change la densité du matériau de façon inhomogène et aléatoire. L'évaluation des résultats se fait donc uniquement en comparant entre eux les résultats expérimentaux pour les différents échantillons suspendus en SiNx.

### 4.4.1 Mesures en transmission

Le spectre de transmission correspondant à  $|t|^2$  est extrait à partir des intensités  $T_0$  et  $T_1$  diffractées dans les ordres 0 et 1. Cette transmission ne dépend que du rapport  $L/D$  déterminé expérimentalement. La figure 4.7 (a) superpose sur la gamme  $1 - 5.5 \mu\text{m}$  le spectre de transmission déterminé à partir des intensités  $T_0$  et  $T_1$  (courbe rouge) et le spectre de transmission directement mesuré à travers la membrane non structurée (courbe noire). En dehors de la zone de non résolution angulaire, les deux spectres coïncident bien pour  $\lambda < 2.5 \mu\text{m}$  et notamment au maximum de transmission à  $\lambda = 1.54 \mu\text{m}$ . Ces différences peuvent être en partie expliquées par l'inhomogénéité des matériaux. En effet, la couleur inhomogène des échantillons (cf figures 4.7 (c) et (d)) indique clairement des variations de l'épaisseur de SiNx. Comme cela est expliqué dans l'annexe A, l'épaisseur de SiNx pour ces échantillons est estimée à  $d' \approx 450 \text{ nm}$ . Seulement dans l'hypothèse où cette variation d'épaisseur du SiNx est due à

une attaque chimique et est donc isotrope : la surface du SiNx ne peut plus être considérée plane, ce qui peut affecter les mesures optiques. Dans l'incertitude sur l'épaisseur de SiNx, le déphasage  $\Delta\phi$  entre le SiNx et la référence est déterminé au lieu de la phase du coefficient  $t$  et est tracé sur la figure 4.7 (b). Il est extrait de trois façons : à partir de  $(T_0, T_1)$ ,  $(T, T_0)$  et  $(T, T_1)$ . De même, les données correspondent pour  $\lambda < 2.5 \mu\text{m}$  mais pas pour  $\lambda > 2.5 \mu\text{m}$ .



**FIGURE 4.7** – Mesure du coefficient complexe de transmission  $t$ . (a) Spectres de transmission  $|t|^2$  obtenu à partir des intensités  $T_0$  et  $T_1$  (courbe rouge) et  $T$  obtenu par mesure directe de la membrane non structurée (courbe noire). (b) Déphasage  $\Delta\phi$  entre le SiNx et la référence déterminé de trois façons : à partir de  $T_0$  et  $T_1$  (courbe rouge),  $T$  et  $T_0$  (courbe noire) et  $T$  et  $T_1$  (courbe bleue). Images au microscope optique de la membrane non structurée (c) et du réseau suspendu (d).

#### 4.4.2 Mesures en réflexion

Les intensités  $R_0$  et  $R_1$  diffractées en réflexion par le réseau d'or sur membrane non structurée sont déterminées de la même façon qu'en transmission sur la gamme  $1 - 5.5 \mu\text{m}$  avec un pas angulaire de  $0.1^\circ$  pour un angle d'incidence  $\theta_i = 5^\circ$ , l'angle de collection variant entre  $8$  et  $17^\circ$  (le faisceau incident est polarisé  $TE$ ). La période du réseau est égale dans ce cas à  $D = 50 \mu\text{m}$ . Les ordres diffractés sont dans ce cas assez espacés entre eux pour être résolus angulairement sur toute la gamme spectrale. La direction  $\theta_n$  des maxima d'intensité correspondant à l'ordre  $n$  est recherchée suivant le modèle  $\sin \theta_n = a_n + b_n \lambda$ . Les résultats des régressions linéaires sont résumés dans le tableau 4.3 : pour tous les ordres 0, 1 et 3. Ces résultats montrent que les mesures expérimentales ne sont pas en

parfait en accord avec la formule du réseau  $\sin \theta_n = \sin 2\theta_i + n \frac{\lambda}{D}$  pour un angle d'incidence  $\theta_i = 5^\circ$  ; en revanche ils correspondent bien avec l'échantillon. En effet, pour un pas angulaire de  $0.1^\circ$ , on peut considérer que  $(180/\pi) \arcsin(a_n)$  diffère de  $2\theta_i$  pour tous les ordres.

Ordres $n$	$(180/\pi) \arcsin(a_n)$ (en degré)	$n/b_n$ (en $\mu\text{m}$ )
0	10.1	0
1	10.2	51
3	10.1	51

**Tableau 4.3** – Résultats de la recherche de corrélation linéaire pour le modèle  $\sin \theta_n = a_n + b_n \lambda$  appliqué aux ordres  $n = 0, 1$  et 3 en réflexion.

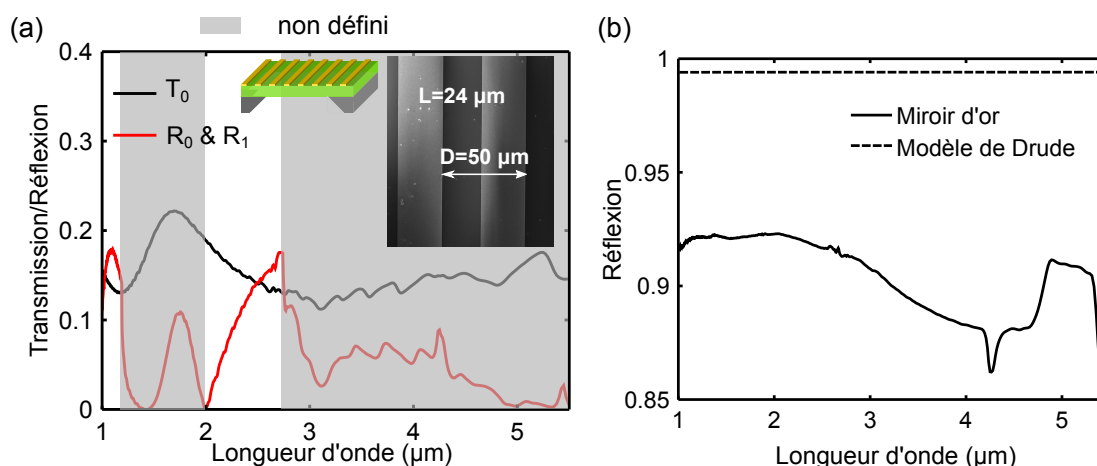
Le spectre de l'intensité  $T_0$  diffractées dans l'ordre 0 en transmission pour une incidence normale est présenté sur la figure 4.8 (a)<sup>1</sup> ; la transmission maximale de 0.22 coïncide ainsi avec la valeur attendue  $T_0 = \frac{L^2}{D^2} |t|^2$ , la transmission à travers l'or étant nulle. Le rapport  $L/D = 0.48$  réel déterminé à l'aide d'une image MEB est aussi en accord avec la transmission maximale de 0.22 de  $T_0$ . Ce maximum est atteint à  $\lambda = 1.70 \mu\text{m}$ , ce qui indique une épaisseur nominale de  $d = 500 \text{ nm}$  par comparaison avec les résultats de l'annexe A.1. L'objectif de conservation de l'épaisseur initiale de SiNx discuté dans l'annexe A.2 est atteint en utilisant la résine Protek B3 comme protection lors de la gravure du substrat par le TMAH.

Le spectre de réflexion  $|r|^2$  déterminé à partir de  $R_0$  et  $R_1$  est également tracé sur la figure 4.8 (a). La réflexion  $|r|^2$  extraite ne dépend que du rapport  $L/D = 0.48$  et de la réflexion d'un miroir d'or pris comme référence d'amplitude. Ce miroir d'or est situé sur le même échantillon que le réseau d'or sur membrane non structurée et a donc subi toutes les étapes du procédé de fabrication, notamment la protection par une couche de Protek B3 lors de la gravure du substrat. Ainsi, la faible réflectivité de ce miroir comparée à celle d'un miroir d'or décrit par un modèle de Drude (cf page 42) peut être due aux résidus de résine Protek B3 sur le miroir (cf annexe A.2). Cependant, cela n'explique pas le fait que seule une faible part de la gamme spectrale soit accessible, les résultats de l'extraction n'étant pas définis pour l'autre part, comme cela est prévu dans le chapitre 3. Cela indique en revanche des erreurs systématiques très importantes sur les mesures de  $R_0$  et  $R_1$ . De plus, contrairement aux mesures en transmission, la proportionnalité des intensités  $R_n$  entre elles n'est pas observée (ces résultats ne sont pas montrés). Ces erreurs sont supposées être dues principalement aux défauts d'alignement du montage. En effet, les résultats du tableau 4.3 des décalages angulaires de l'ordre de  $0.1^\circ$  avec les valeurs attendues selon la formule du réseau. La difficulté particulière des mesures en configuration de réflexion est mise en évidence, car elles requièrent de placer l'échantillon sur l'axe de rotation des platines rotatives avec davantage de précision qu'en configuration de transmission.

Comme la réflectivité du miroir d'or ne peut pas être décrite par un modèle de Drude, il n'est pas possible de connaître le déphasage à la réflexion. Le choix de l'or comme référence de phase de réflexion comme les références [1–3] n'est donc pas compatible avec la résine Protek B3 utilisée pour

1. Les spectres d'intensités diffractés en transmission et réflexion présentent des oscillations d'amplitudes d'autant plus grandes que la période  $D$  des réseaux est petite, quel que soit le réseau : cela est dû à l'apparition des nouveaux ordres propagatifs qui entraînent des réorganisations de la répartition de l'énergie totale diffractée.





**FIGURE 4.8** – Mesure de l'amplitude  $|r|$  du coefficient de réflexion. (a) Spectre de l'intensité  $T_0$  diffractée dans l'ordre 0 en transmission à incidence normale (courbe noire) et image MEB du réseau d'or sur membrane non structurée en SiNx en encart; réflexion  $|r|^2$  obtenue à partir des intensités  $R_0$  et  $R_1$  (courbe rouge). (b) Spectres de réflectivité du miroir d'or utilisé comme référence et d'un miroir d'or décrit par un modèle de Drude.

protéger la couche de SiNx et conserver son épaisseur initiale.

#### 4.4.3 Détermination de la permittivité

Les mesures présentées ci-dessus visent à déterminer le coefficient complexe de transmission  $t$  d'une part, et le coefficient complexe de réflexion  $r$  d'autre part. La détermination de la permittivité du SiNx à partir de  $t$  et  $r$  par l'algorithme d'inversion défini dans la section 1.4 n'a finalement pas été effectuée. Deux raisons sont avancées :

1. les mesures en réflexion ont une faible précision, celle-ci étant indiquée par les larges plages de longueurs d'onde pour lequel le résultat de l'algorithme n'est pas défini : on craint alors que la permittivité mesurée soit très éloignée de la valeur vraie.
2. le pré-requis d'un matériau homogène n'est pas satisfait.

L'objectif de cette caractérisation du SiNx est de valider la méthode expérimentale. Le SiNx semble donc peu indiqué pour ce rôle, puisque son procédé de fabrication sans substrat peut conduire à des échantillons inhomogènes. Le choix de l'or comme matériau de référence en réflexion peut aussi être discutée. En effet, la phase à la réflexion sur l'or ne peut pas toujours être donnée par le modèle de Drude, comme dans le cas présenté où la surface d'or est couverte de résidus organiques. Par exemple, la rugosité du miroir peut également influencer sa réflexion.

## 4.5 Caractérisation du silicium

Des échantillons suspendus (réseaux et membranes non structurées) sont fabriqués à partir de substrat SOI (*Silicon On Insulator* en anglais). Ils présentent plusieurs avantages par rapport aux échantillons suspendus en SiNx (cf annexe A.3) :

- les couches de silice de part et d'autre de la couche de silicium empêchent sa gravure lors de l'étape de gravure du substrat par le TMAH,

- le procédé de fabrication est simplifié par l'absence des étapes de contrôle des propriétés mécaniques ; de plus, les couches proviennent toutes du même substrat SOI, les propriétés optiques ne sont donc pas susceptibles de varier d'un échantillon à l'autre,
- les couches de silicium sont plus épaisses que les couches en SiNx, ce qui leur confère une plus grande solidité.

#### 4.5.1 Fabrication d'échantillons suspendus en silicium

Les substrats SOI sont composés d'une couche de  $3\ \mu\text{m}$  de silicium cristallin posée sur un substrat de silicium orienté  $\langle 100 \rangle$  d'épaisseur  $700\ \mu\text{m}$  avec une couche de silice enterrée d'épaisseur  $0.3\ \mu\text{m}$  entre les deux. Le procédé de fabrication d'un réseau suspendu est décrit sur la figure 4.9 (a) La structure d'un masque de gravure en nickel (étape (C)) et la gravure plasma anisotrope de la couche supérieure du substrat SOI permettent de définir le réseau ; Le substrat est finalement ouvert par gravure du silicium par le TMAH (cf image MEB sur la figure 4.9 (b)). L'épaisseur des réseaux et membranes non structurées en silicium est finalement d'environ  $2.8\ \mu\text{m}$ .

#### 4.5.2 Perspectives

Les échantillons obtenus peuvent être mesurés à l'aide du montage GonioVISIR. De plus, comme cela est évoqué dans le chapitre 3, une épaisseur plus importante conduit à des incertitudes plus faibles sur l'indice déterminé.

Les mesures des intensités  $T_0$  et  $T_1$  diffractées en transmission par le réseau suspendu en SiNx décrites dans la section 4.3 peuvent être reproduites de la même façon. Inverser  $T_0$  et  $T_1$  devrait ainsi permettre d'extraire le coefficient complexe de transmission  $t$  qui sera alors comparé à la transmission mesurée directement à travers la membrane non structurée.

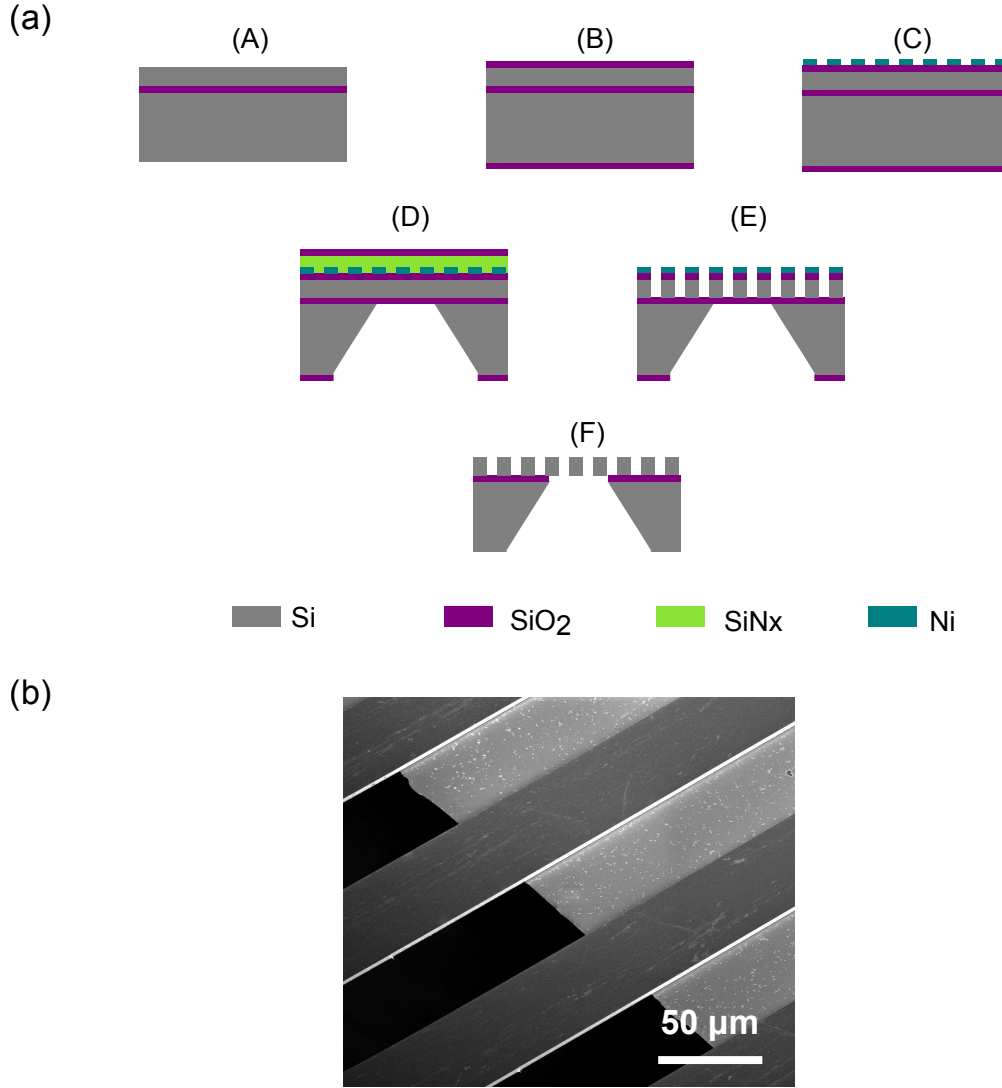
Des mesures en réflexion pour calculer le coefficient complexe de réflexion ne sont toutefois pas nécessaires. En effet, le coefficient  $r$  peut être déterminé à partir de  $t$ , en remarquant que pour une lame suspendue de matériau non absorbant (matériau 1 dans l'air 2) :

$$\frac{r}{t} = \frac{ir_{12} \sin(k_z d)}{t_{21} t_{12}}, \quad (4.1)$$

avec  $r_{12}$  et  $t_{12}$  les coefficients de Fresnel de réflexion et transmission à l'interface air/silicium,  $t_{21}$  le coefficient de Fresnel à l'interface silicium/air et  $k_z$  la constante de propagation dans le matériau d'épaisseur  $d$ .  $r_{12}$  étant positif ou négatif, son argument vaut 0 ou  $\pi$  (pour la polarisation  $TE$ ,  $r_{12}$  est négatif (cf équations 3.12)). De plus, pour un matériau non absorbant les arguments de  $t_{12}$  et  $t_{21}$  sont nuls. Pour  $r_{12} < 0$  (par exemple à incidence normale pour la polarisation  $TE$  dans le cas du silicium), la phase du coefficient de réflexion peut être déterminée à partir de celle du coefficient de transmission suivant :

$$\phi_r = \phi_t + 2\pi + (-1)^{m+1} \frac{\pi}{2}, \quad (4.2)$$

avec  $m \in \mathbb{N}$ .  $m$  désigne l'ordre de la résonance de Fabry-Perot à la longueur d'onde  $\lambda_m$  identifiable sur le spectre de transmission ou de réflexion d'une membrane non structurée. Les longueurs d'onde



**FIGURE 4.9** – (a) Procédé de fabrication d’un réseau suspendu en silicium. (A) Substrat SOI Si/SiO<sub>2</sub>/Si d’épaisseurs 3 μm/0.3 μm/700 μm. (B) Formation de couches de 250 nm d’épaisseur de silice par oxydation thermique du silicium. (C) Structuration du masque nickel de 100 nm d’épaisseur par lithographie et lift-off. (D) Dépôt d’une bi-couche protectrice de SiNx et de silice par PECVD et gravure du substrat de silicium par une solution de TMAH. (E) Structuration du réseau de SiNx par gravure plasma. (F) Retrait du masque de Ni à l’acide nitrique et gravure de la couche de silice enterrée à l’acide fluorhydrique. (b) Image MEB d’un réseau suspendu de période  $D = 100 \mu\text{m}$  et de facteur de remplissage  $L/D = 0.5$ .

$\lambda_m$  coïncident avec les solutions de l’équation :  $\sin(k_z d) = 0$ . Pour  $\lambda < \lambda_1$  :  $\phi_r - \phi_t = \frac{3\pi}{2}$  ; pour  $\lambda > \lambda_1$ ,  $\phi_r - \phi_t$  est également constant sur toute gamme spectrale  $\lambda_{m+1} - \lambda_m$ . Connaître  $\phi_r$  sur toute la gamme spectrale considérée nécessite donc de connaître la longueur d’onde  $\lambda_1$  de la résonance de Fabry-Perot d’ordre 1. Cependant, pour une épaisseur de silicium  $d = 2.8 \mu\text{m}$ , la longueur d’onde  $\lambda_1$  ne se situe pas dans la gamme de mesure :  $\lambda_1 > 5.5 \mu\text{m}$ . Par conséquent, étendre la gamme de mesure à  $3 - 16 \mu\text{m}$  en utilisant le détecteur MCT serait souhaitable dans ce cas. Les mêmes mesures d’ordres diffractés en transmission pourraient être réalisées sur cette gamme. Toutefois, obtenir la totalité du spectre de l’intensité  $T_{-1}$  pour la plus grande longueur nécessite d’augmenter la plage des angles de

collection : on pourrait alors vouloir se limiter aux mesures spéculaires de  $T$  et  $T_0$ .

## 4.6 Conclusion

Dans ce chapitre, j'ai résumé les résultats obtenus sur la fabrication d'échantillons suspendus en SiNx, les mesures par spectrométrie FTIR et le traitement des données expérimentales dans le but d'extraire la permittivité du SiNx. La méthode consiste à déterminer d'abord les coefficients complexes de transmission et de réflexion à partir d'intensités diffractées par des réseaux à base de SiNx. Cependant, l'extraction de la permittivité à partir des coefficients complexes  $r$  et  $t$  selon l'algorithme introduit dans la section 1.4 n'est finalement pas effectuée. Seul le coefficient de transmission  $t$  est obtenu, mais avec réserve du fait de la qualité de l'échantillon : le SiNx est inhomogène à cause d'attaques chimiques au cours du procédé de fabrication. Le coefficient de réflexion n'est pas obtenu principalement à cause de la faible précision des mesures en réflexion dans cette configuration particulière du montage expérimental. L'analyse des données expérimentales de réflexion a montré qu'un alignement angulaire imprécis à  $0.1^\circ$  peut expliquer le fait que les résultats soient non définis pour  $r$  sur presque la totalité de la gamme spectrale considérée.

L'application de cette méthode au silicium est proposée en ne prévoyant que des mesures en transmission car  $r$  peut être déterminé à partir de  $t$ . La fabrication d'échantillons suspendus en silicium est possible à partir de substrat SOI ; ces échantillons ont de plus l'avantage d'être plus solides et de meilleure qualité, le silicium ne subissant pas d'attaque chimique.

Ce travail n'a pas été mené à terme dans le cadre de cette thèse, mais pourra être poursuivi avec le silicium avec de grandes chances de succès.

Un facteur reste également à étudier : la précision photométrique du FTIR. Les opérations de transformée de Fourier, effectuées par le logiciel du FTIR, n'ont ainsi pas été contrôlées, de même que la linéarité du détecteur.

## Références

- [1] S. Zhang, W. Fan, N. C. Panoiu, K. J. Malloy, R. M. Osgood, and S. R. J. Brueck, "Experimental demonstration of near-infrared negative-index metamaterials," *Phys. Rev. Lett.* **95**, 137404 (2005).
- [2] B. Kanté, J.-M. Lourtioz, and A. de Lustrac, "Infrared metafilms on a dielectric substrate," *Phys. Rev. B* **80**, 205120 (2009).
- [3] B. Kanté, "Les métamatériaux, des micro-ondes à l'optique, théorie et applications," *Ann. Phys.* **34**, 1–120 (2009).
- [4] G. Vincent, S. Collin, N. Bardou, J.-L. Pelouard, and R. Haïdar, "Large-area dielectric and metallic freestanding gratings for mid-infrared optical filtering applications," *Journal of Vacuum Science & Technology B* **26**, 1852–1855 (2008).
- [5] C. Billaudeau, "Optical waveguiding in 1D and 2D plasmonic crystals," *Theses, Université Paris Sud - Paris XI* (2007).

- [6] C. Billaudeau, S. Collin, C. Sauvan, N. Bardou, F. Pardo, and J.-L. Pelouard, “Angle-resolved transmission measurements through anisotropic two-dimensional plasmonic crystals,” *Optics letters* **33**, 165–167 (2008).
- [7] W. Claassen, W. Valkenburg, F. Habraken, and Y. Tamminga, “Characterization of plasma silicon nitride layers,” *Journal of the Electrochemical Society* **130**, 2419–2423 (1983).



## **Deuxième partie**

# **Conception de filtres métal-diélectriques à résonance de mode guidé**





## Chapitre 5

# Filtrage spectral dans l'infrarouge

Plusieurs types de filtres infrarouge sont introduits dans ce chapitre, et notamment les filtres à résonance de mode guidé. J'explique tout d'abord l'origine du rayonnement infrarouge et présente brièvement quelques applications spécifiques de ce domaine spectral. Les filtres à résonance de mode guidé (GMR) sont ensuite définis, et des voies d'amélioration de la réjection et la tolérance angulaire sont analysées. Finalement, j'examine l'influence de la symétrie des structures sur la réponse optique de filtres infrarouge, cette question étant préalable à leur conception et leur fabrication qui sont discutées dans les chapitres 6 et 7.

### 5.1 Introduction

#### 5.1.1 Le rayonnement infrarouge

##### Définition

L'infrarouge (IR), comme le montre la figure 5.1, est le domaine du spectre électromagnétique inclus entre le visible et le térahertz (THz), correspondant à un rayonnement de longueurs d'onde comprises entre 700 nm et 100  $\mu\text{m}$ .

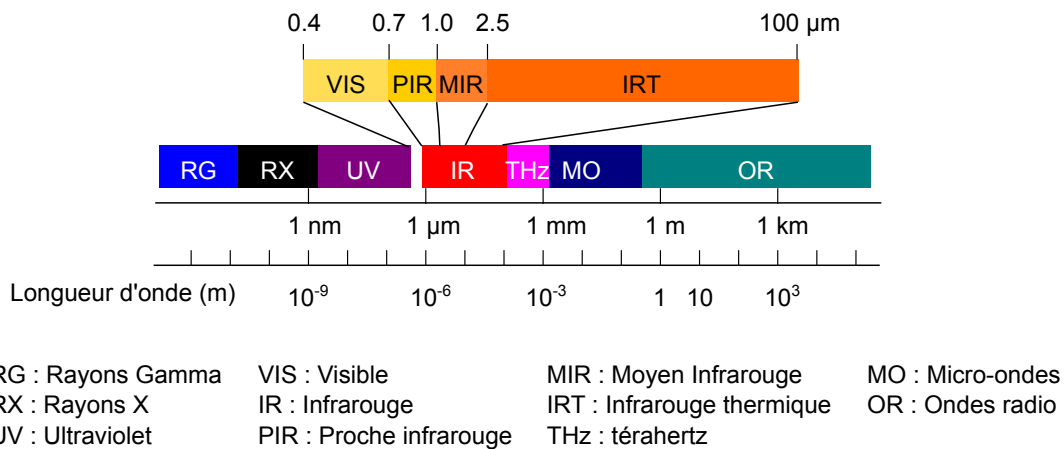
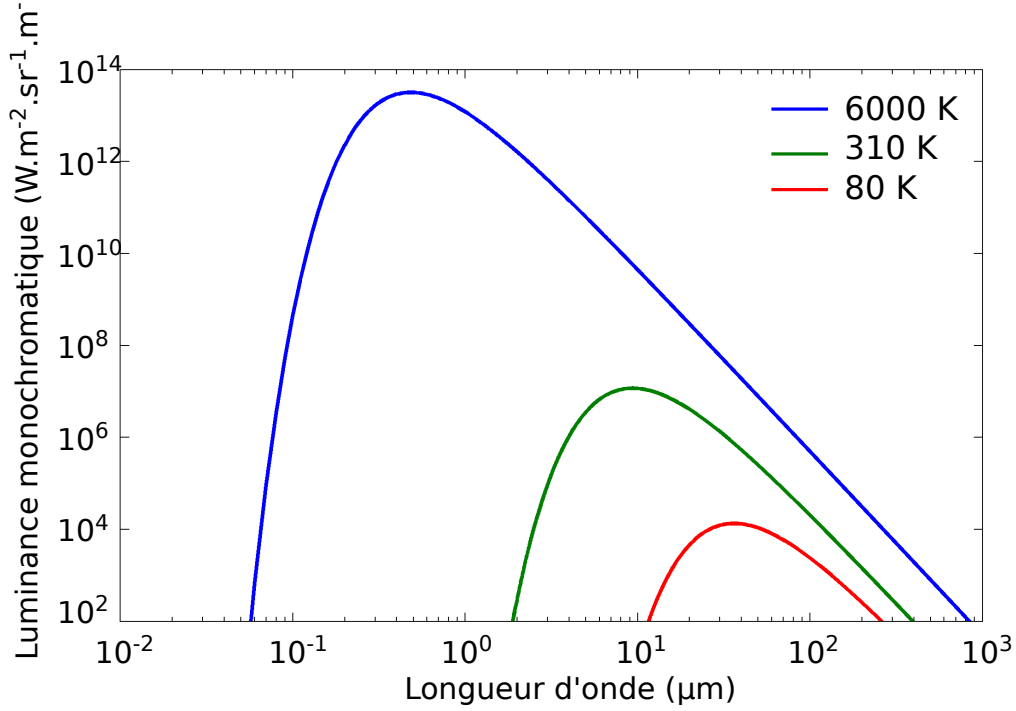


FIGURE 5.1 – Spectre électromagnétique.

## Loi de Planck



**FIGURE 5.2** – Spectres de luminance énergétique pour des corps noirs à 6000 K, 300 K et 80 K, calculés à l'aide de la loi de Planck.

L'origine du rayonnement infrarouge est thermique. En effet, tout objet ayant une température non nulle émet un rayonnement électromagnétique. Dans le cas d'un corps idéal, dit corps noir, il existe une relation entre la luminance monochromatique  $\partial L^o / \partial \lambda$  de ce dernier et la température  $T$ . La loi de Planck s'écrit ainsi :

$$\frac{\partial L^o(\lambda, T)}{\partial \lambda} = \frac{2hc^2}{\lambda^5} \frac{1}{1 - \exp(\frac{hc}{\lambda k_B T})} \quad [W.m^{-2}.sr^{-1}.m^{-1}], \quad (5.1)$$

où  $\lambda$  est la longueur d'onde,  $h$  est la constante de Planck,  $k_B$  est la constante de Boltzmann, et  $c$  la vitesse de la lumière. La puissance monochromatique rayonnée par un corps noir à travers un élément de surface  $dS$  pour un angle solide  $d\Omega$  s'écrit :

$$\frac{\partial P}{\partial \lambda} = \frac{\partial L^o(\lambda, T)}{\partial \lambda} dS.d\Omega \quad [W.m^{-2}.m^{-1}]. \quad (5.2)$$

L'évolution de la luminance  $\partial L^o / \partial \lambda$  en fonction de la longueur d'onde est portée sur la figure 5.2, pour différents corps noirs à la température de 6000 K, 300 K et 80 K. Leur luminance admet systématiquement un maximum à une longueur d'onde  $\lambda_{max}$  prédite par la loi de Wien :

$$\lambda_{max} = \frac{2898}{T[K]} \quad [\mu m] \quad (5.3)$$

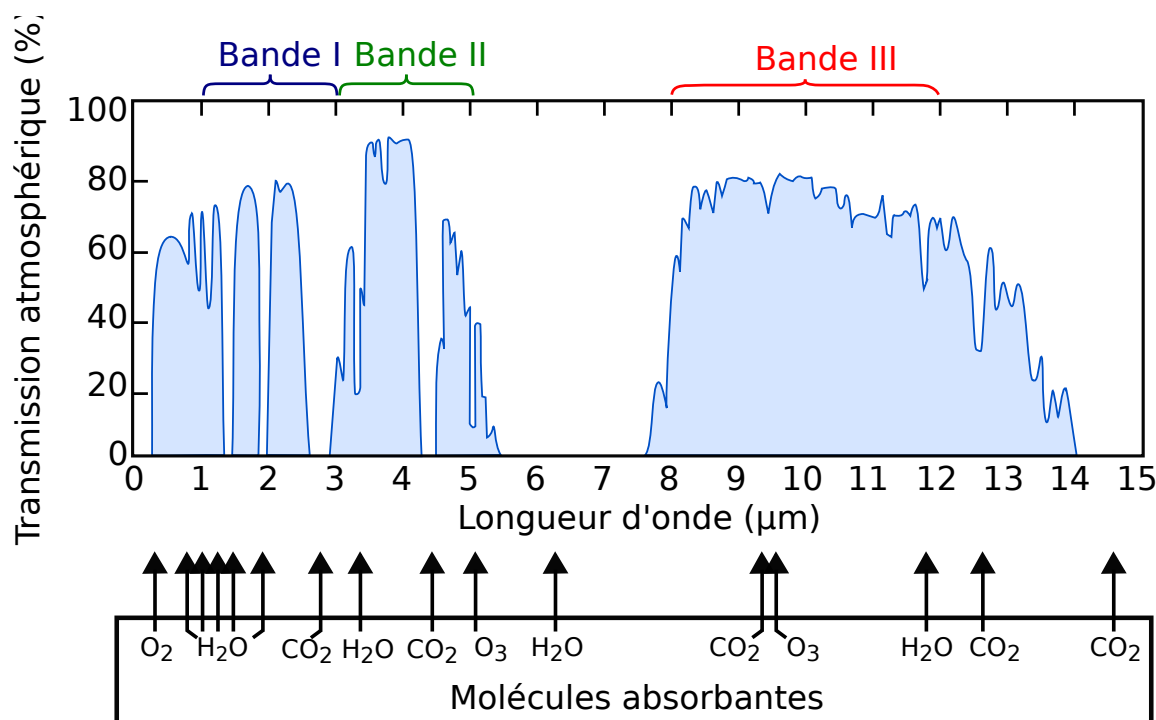
Comme le montre la figure 5.2, cette longueur d'onde  $\lambda_{max}$  se situe dans le domaine visible pour un

corps noir à 6000 K, c'est-à-dire environ la température du Soleil ; un corps humain à une température ambiante de l'ordre de 300 K rayonne dans l'infrarouge autour de  $10\ \mu\text{m}$  ; le rayonnement d'un corps noir à 80 K -typiquement la température de l'azote liquide- se situe également dans l'infrarouge. Finalement, dans la mesure où les différentes courbes de luminance ne se croisent pas, il est possible de déterminer la température du corps noir en mesurant sa puissance rayonnée à une longueur d'onde donnée.

La loi du corps noir correspond toutefois à un comportement idéal : la loi de Kirchhoff pondère le comportement prédit par la loi de Planck par l'émissivité des corps [1].

### 5.1.2 Applications de l'infrarouge

L'infrarouge a des applications civiles et militaires, dans les domaines de la médecine, l'aéronautique ou les télécoms, qui exploitent l'émission thermique d'objets.

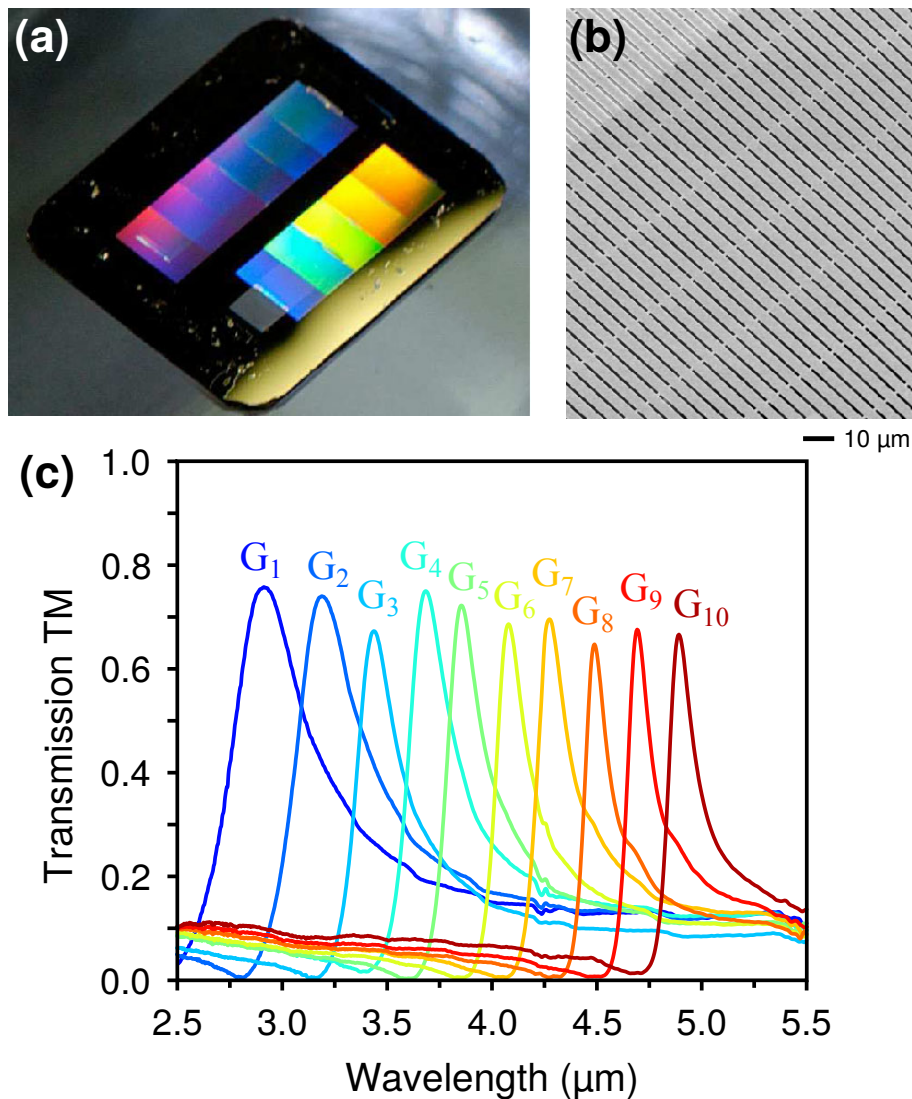


**FIGURE 5.3** – Spectre infrarouge de transmission de l'atmosphère acquis depuis un satellite visant la Terre, définition de sous-domaines spectraux (bandes I, II, III) et indication des molécules caractéristiques des bandes d'absorption.

D'autre part, le spectre infrarouge de transmission de l'atmosphère présente des bandes d'absorption à des longueurs d'onde correspondant à des transitions énergétiques dues à la vibration de liaisons moléculaires. Ce principe général, celui de la spectroscopie IR, peut ainsi être utilisé pour la détection de gaz, les bandes d'absorption étant caractéristiques des liaisons de certaines molécules (par exemple vapeur d'eau, dioxygène, ozone ou dioxyde de carbone présentes dans l'atmosphère comme l'illustre la figure 5.3). Ces bandes d'absorption permettent de séparer le spectre atmosphérique en trois sous-domaines spectraux pour lequel l'atmosphère est transparente, la bande I ( $1 - 3\ \mu\text{m}$ ), la bande II ( $3 - 5\ \mu\text{m}$ ) et la bande III ( $8 - 12\ \mu\text{m}$ ). Le rayonnement atmosphérique *Nightglow* par exemple correspond à

des longueurs d'onde comprises 1.4 et 1.8  $\mu\text{m}$  ; par définition situé en bande I, il est provoqué par des réactions chimiques de gaz de la haute atmosphère. Détecter ce rayonnement lorsqu'il est réfléchi par des objets permet donc d'imager des scènes même par nuit sombre [2].

En plus de détecteurs et de caméras adéquats, il est également nécessaire de concevoir des filtres IR. Ainsi, la thèse de Grégory Vincent, préparée au sein de MiNaO, a conduit à la fabrication d'une matrice de 11 filtres métalliques nanostructurés placée devant des matrices de micro-lentilles pour former le spectro-imageur instantané MULTICAM [3].



**FIGURE 5.4** – Figure reproduite à partir de la référence [4]. (a) Images par microscopie optique et (b) par microscopie électronique à balayage de la matrice de 11 filtres métalliques nanostructurés. (c) Spectre de transmission à incidence normale de 10 filtres de la matrice.

La forte transmission de ces filtres est due à un phénomène de transmission extraordinaire [4, 5]. Ce-

pendant, la réjection de ces filtres reste élevée<sup>1</sup> ; c'est une des raisons pour laquelle la thèse d'Émilie Sakat effectuée au sein de MiNaO s'est orientée vers la conception de filtres à résonance de mode guidé (GMR), avec l'objectif de respecter un cahier des charges permettant d'intégrer ces nouveaux filtres dans MULTICAM [6].

## 5.2 Filtres à résonance de mode guidé

Les filtres GMR ont a priori une réjection meilleure (i.e. plus faible) que les filtres métalliques précédents et leurs spectres ont l'avantage de présenter des pics de forme symétrique. Quelques-uns des critères à réunir pour l'intégration de ces nouveaux filtres dans MULTICAM sont :

- une transmission importante ( $\sim 80\%$ ) dans la bande passante.
- un facteur de qualité de l'ordre de 10 à 30 (cela correspond à des pics de largeurs à mi-hauteur de l'ordre de quelques centaines de nanomètres en bande II et de l'ordre du micromètre en bande III : nous visons en effet une application d'imagerie multi-spectrale, utilisant une dizaine de bandes adjacentes dans les bandes II ou III).
- une insensibilité à la polarisation à la lumière incidente.
- une faible réjection (l'objectif est d'avoir une transmission en dehors de la bande passante inférieure à 1%, et au pire à 5% sur toute la bande II ou la bande III).
- une tolérance angulaire importante (au minimum  $\pm 10^\circ$  et idéalement  $\pm 25^\circ$ ).

### 5.2.1 Définition

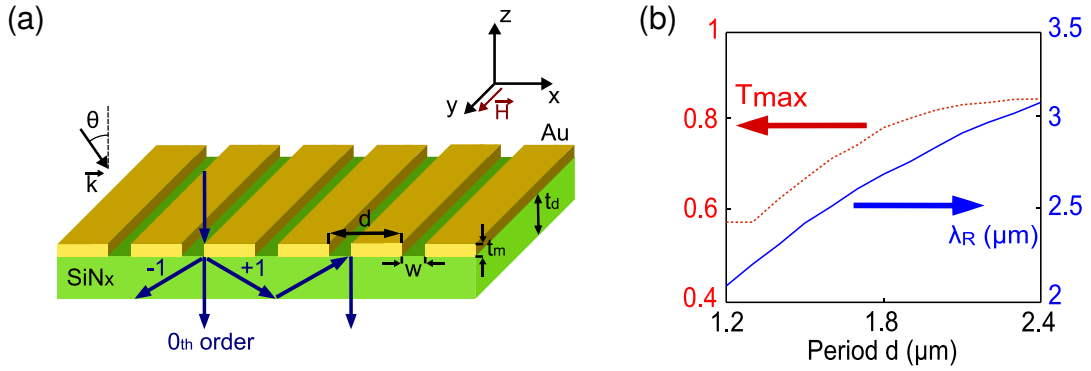
Les résonances de mode guidé sont typiquement définies par le fait de coupler la lumière incidente à un guide d'onde via des ordres diffractés par un réseau périodique [7, 8]. Les filtres GMR, introduits par Magnusson et Wang dans les années 1990, ont tout d'abord été des structures tout-diélectriques présentant une sélectivité spectrale très importante (la largeur à mi-hauteur (FWHM) des pics n'excède pas alors quelques nanomètres en bande I [9]). Afin de réaliser des pics de FWHM plus importantes compatibles avec les critères indiqués ci-dessus, les filtres développés lors de la thèse d'Émilie Sakat [6] incluent des réseaux métalliques à fentes étroites, qui permettent également d'assurer une forte réflectivité en dehors de la bande passante. Ainsi, les premières structures proposées sont composées d'un réseau en or de période  $d$  posé sur un guide d'onde en nitrure de silicium ( $\text{SiN}_x$ ), comme l'illustre la figure 5.5 (a). La résonance de cette structure est due dans ce cas au couplage des ordres  $\pm 1$  (créés par le réseau métallique de période  $d$ ) avec les modes propres du guide d'onde, alors que seuls les ordres 0,  $+1$  et  $-1$  sont propagatifs dans le guide d'onde et que seul l'ordre 0 est propagatif dans l'air. De même que pour les filtres tout-métalliques présentés plus haut, les propriétés d'accordabilité de ces filtres GMR (cf figure 5.5 (b)) peuvent être exploitées pour sélectionner des bandes spectrales en changeant les paramètres géométriques selon trois règles de conception :

---

1. Pour un filtre passe-bande, le taux de réjection peut être défini comme le rapport entre la transmittance maximale du filtre en dehors de la bande passante et la transmittance maximale.

- (i) la longueur d'onde de résonance augmente quand la période  $d$  du réseau augmente,
- (ii) la longueur d'onde de résonance diminue quand la largeur  $w$  des fentes augmente,
- (iii) augmenter simultanément la période et la largeur des fentes permet de garder constante la longueur d'onde de résonance tout en augmentant le maximum de transmission et la largeur à mi-hauteur [6, 10].

De plus, en conservant le même empilement or/SiNx, passer d'un réseau métallique 1D à un réseau 2D (avec la même période dans les deux directions) permet de rendre la réponse du filtre GMR insensible à la polarisation à incidence normale, puisque seule la lumière polarisée TM (i.e. avec un champ  $\mathbf{H}_y$  parallèle aux fentes) est transmise [11].



**FIGURE 5.5** – Figure reproduite à partir de la référence [10]. Représentation des règles d'accordabilité du filtre GMR. (a) Schéma de la structure : le réseau d'or a une période  $d$ , une épaisseur  $t_m$  et une largeur de fente  $w$  et le guide d'onde est d'épaisseur  $t_d$ . (b) Maximum de transmission  $T_{max}$  et position spectrale du pic  $\lambda_R$  en fonction de la période du réseau pour  $w = 215$  nm,  $t_m = 70$  nm et  $t_d = 540$  nm.

### 5.2.2 Amélioration de la réjection

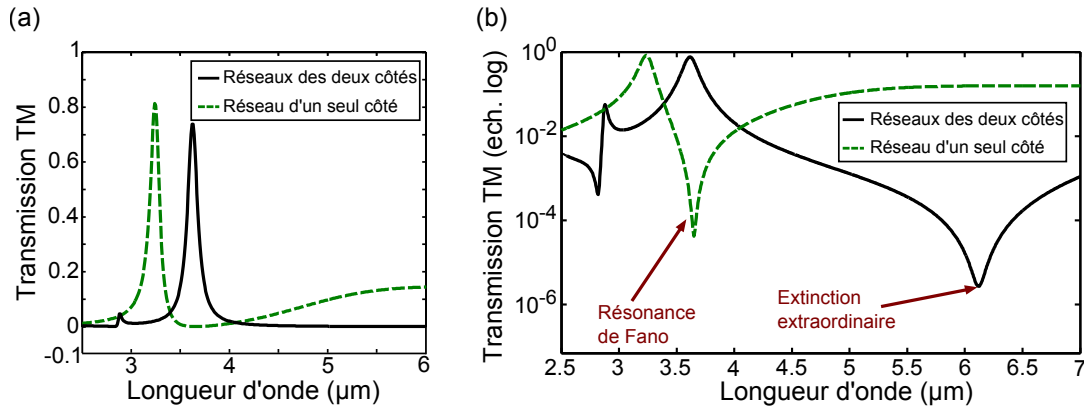
Le spectre de transmission d'une structure analogue à celle de la figure 5.5 (a) est tracé sur la figure 5.6 (a) et comparé à celui d'une structure qui possède deux réseaux métalliques identiques de chaque côté du guide d'onde (les paramètres géométriques restent par ailleurs les mêmes pour les deux structures). La deuxième structure, avec deux réseaux de chaque côté, présente une meilleure réjection que la structure avec un seul réseau métallique, pour laquelle une transmission supérieure à 10% est atteinte en dehors de la bande passante. En effet, tracer ces mêmes spectres en échelle semi-logarithmique (cf figure 5.6 (b)) permet clairement de mettre en évidence deux minima de transmission.

L'un des minima, situé à environ  $3 \mu\text{m}$ , est dû à une résonance de Fano. Une résonance de Fano résulte de l'interférence entre un canal de fond non résonant et un canal résonant, donnant lieu à un minimum ou un maximum de transmission suivant que l'interférence est destructive ou constructive [12]. Dans notre cas, le canal non résonant correspond à la transmission directe de l'ordre 0 du milieu d'entrée vers l'ordre 0 du milieu sortie ; le canal résonant correspond quant à lui à la transmission dans l'ordre 0 du milieu de sortie après couplage et guidage des ordres diffractés  $\pm 1$  dans le guide d'onde. Le zéro de Fano à proximité du maximum de transmission assure ainsi une réjection correcte aux filtres conçus par Le Perchec *et al.* composés d'un seul réseau 2D en aluminium et d'un guide d'onde en silicium [13].

Cependant, une résonance de Fano donne lieu à une ligne de base de forme asymétrique : le zéro de Fano s'accompagne donc d'une augmentation de la transmission en dehors de la bande passante quand la longueur d'onde augmente.

L'autre minimum de transmission observé à environ  $6\ \mu\text{m}$  est dû à un phénomène d'extinction extraordinaire. Étudié par Thomas Estruch au cours de sa thèse, cette extinction repose sur le transfert d'énergie de l'ordre 0 propagatif vers les ordres  $\pm 1$  évanescent, à chaque réflexion interne sur l'une des deux interfaces métalliques [14]. La position spectrale de cette extinction dépend des paramètres opto-géométriques de la structure (notamment décalage latéral des deux réseaux).

En conclusion, concevoir des filtres GMR métal-diélectriques avec un réseau d'or de chaque côté du guide d'onde permet d'augmenter considérablement l'efficacité de réjection. Si la combinaison des deux réseaux assure logiquement une meilleure réduction de la transmission en dehors de la bande passante grâce aux réseaux très réfléchissants (mais s'accompagne également d'une légère diminution du maximum de transmission), il ne s'agit pas de la raison principale. Pour des filtres GMR opérant en bande II, le phénomène d'extinction extraordinaire à l'origine d'un minimum de transmission en dehors de la bande induit une réjection optimale sur l'ensemble de celle-ci. Ce nouveau design permet la validation du critère associé à la réjection en vue de l'application du spectro-imageur MULTICAM.



**FIGURE 5.6** – Figure extraite de la thèse d'Émilie Sakat [6]. Spectres sous incidence normale de filtres GMR métal-diélectriques avec deux réseaux métalliques périodiques des deux côtés (courbe noire) et avec un seul réseau (structure analogue à celle de la figure 5.5 (a)) (courbe pointillée verte) : (a) en échelle linéaire et (b) en échelle semi-logarithmique. Les paramètres géométriques sont :  $w = 250\ \text{nm}$ ,  $t_m = 100\ \text{nm}$  et  $t_d = 700\ \text{nm}$  et  $d = 2110\ \text{nm}$ .

### 5.2.3 Tolérance angulaire

La tolérance angulaire des filtres GMR tout-diélectriques est en général très faible (inférieure à  $2^\circ$  par exemple pour la structure de la référence [9]); celle des filtres GMR métal-diélectriques présentés plus haut est inférieure à  $10^\circ$  : cela constitue une raison supplémentaire pour considérer d'autres concepts de filtres GMR. L'introduction de la structure bi-atome par Lemarchand *et al.* a permis d'augmenter la tolérance angulaire des filtres GMR diélectriques (limitée toutefois à  $8^\circ$  environ) [15, 16]. Les travaux d'Émilie Sakat ont à leur tour permis de faire émerger des filtres GMR métal-diélectriques tolérants angulairement basés sur la même structuration bi-atome des réseaux métalliques [17] ; l'empir-

lement métal/diélectrique/métal est par ailleurs adopté pour assurer une meilleure réjection des filtres, selon le principe exposé ci-dessus (cf figure 5.7 (a)). Chacun des réseaux de période  $d$  possèdent deux fentes par période : une première de largeur  $a$  et une deuxième de largeur  $a + l$ , leur centre distant de  $d/2$ .

La conception de ces filtres repose sur le pilotage de l'ouverture du gap. En effet, à incidence normale, les deux ondes stationnaires créées par la superposition des ordres  $+1$  et  $-1$  résultent d'un couplage symétrique ou anti-symétrique. Ces deux modes ont des niveaux d'énergie dégénérés, ce qui se traduit par une ouverture de gap  $\sigma_g$  au centre de la zone de Brillouin. Par ailleurs, dans une certaine limite, plus le gap est grand plus la bande de dispersion est plate. La tolérance angulaire étant la conséquence d'une bande de dispersion plus ou moins plate, elle est donc pilotée par l'ouverture du gap. Par exemple, les figures 5.7 (b) et 5.7 (d) représentent les diagrammes de transmission et les relations de dispersion associés à deux structures bi-atome différentes. Les diagrammes de transmission nous indiquent que la tolérance angulaire est plus grande dans le cas de la figure 5.7 (b), en accord avec une relation de dispersion quasiment plate, contrairement au cas de la figure 5.7 (d). Sakat *et al.* ont également établi une règle simple de conception des filtres bi-atome en observant que toutes les structures de même gap  $\sigma_g$  suivent la loi  $a + l/2 = C$ , où  $C$  est une constante : il existe ainsi une valeur optimale de  $C$  pour laquelle la relation de dispersion est quasiment plate.

Une tolérance angulaire de  $17^\circ$  peut être extraite à partir d'un ensemble de spectres de transmission  $T(\lambda)$  à divers angles d'incidence comme celui de la figure 5.7 (c) : si  $\lambda_R$  est la longueur d'onde de résonance à incidence normale, la tolérance angulaire de nos structures sera définie par la suite comme la largeur à mi-hauteur de la courbe  $T(\lambda = \lambda_R)$  en fonction de l'angle d'incidence (il s'agit de la définition introduite par Sakat *et al.*). Ainsi, d'après les résultats rapportés dans la référence [17], les filtres métal-diélectriques bi-atome ont une tolérance angulaire deux fois supérieure à celle des filtres simplement périodiques ( $9.5^\circ$  contre  $17^\circ$ ). Par ailleurs, ces structures proposent une fonction originale de transmission limitée angulairement, ( $T_{max}$  pour  $\theta < 17^\circ$  et  $T \sim 0$  au-delà pour  $\lambda \sim \lambda_R$ ).

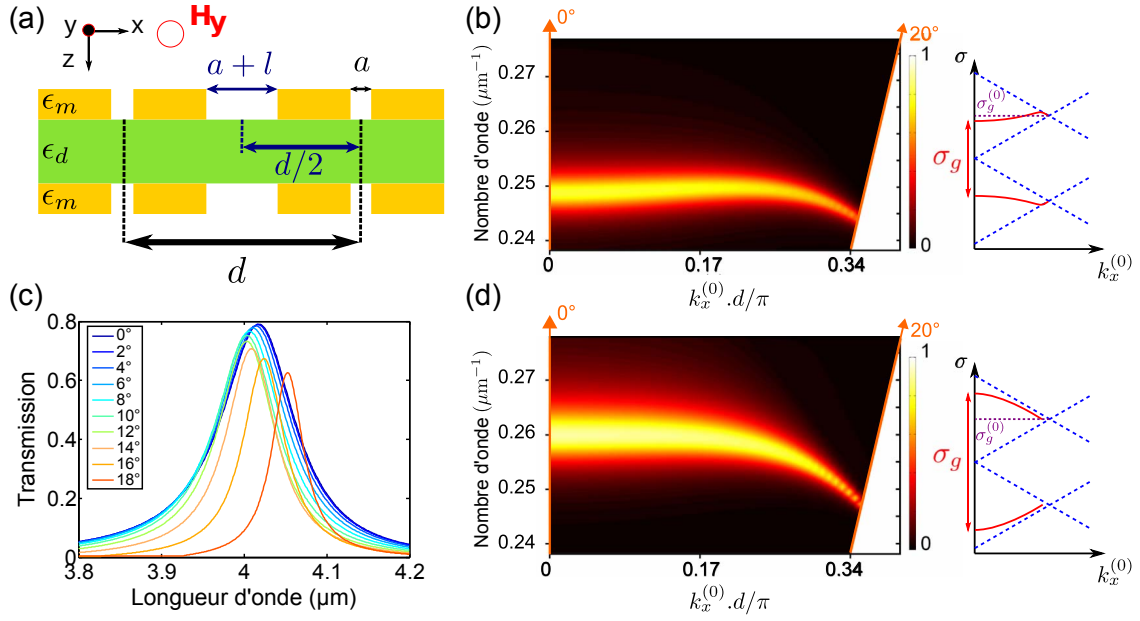
### 5.3 Influence de la symétrie dans la conception de filtres infrarouge

Tous les calculs de réponse optique de filtres GMR présentés dans ce chapitre sont réalisés en considérant des structures suspendues dans l'air. Bien que la présence d'un substrat assure une plus grande solidité à l'ensemble, des filtres GMR suspendus ont été fabriqués par notre équipe dans le cas de structures avec un seul réseau métallique 1D ou 2D [10, 11] ; ces structures permettent ainsi de maximiser la transmission du filtre en évitant la réflexion à l'interface substrat/air. Les réseaux suspendus se justifient de plus par l'intérêt de conserver une structure symétrique pour optimiser la transmission, comme par exemple dans le cas des filtres tout-métalliques fabriqués par Grégory Vincent [4] ou des filtres GMR encapsulés [18].

#### 5.3.1 Influence de la symétrie pour des filtres à base de nanostructures métalliques

L'influence de la symétrie sur la réponse optique de filtres IR ne dépend pas uniquement de la géométrie, mais dépend également de la nature de la résonance. En effet, Porto *et al.* ont montré que



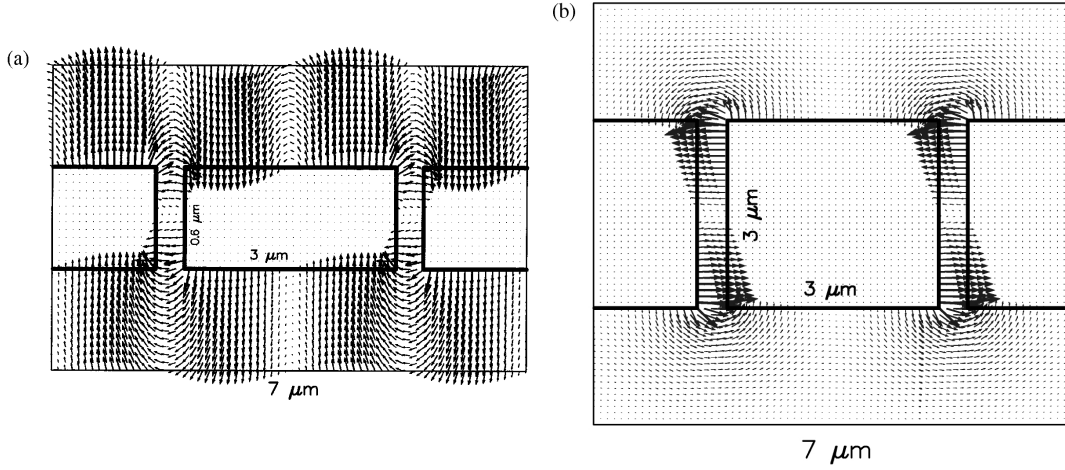


**FIGURE 5.7** – Figures extraites de la thèse d’Émilie Sakat [6]. (a) Schéma de la structure bi-atome composée de deux réseaux métalliques identiques de part et d’autre du guide d’onde diélectrique : les réseaux ont une période  $d$  et une première fente de largeur  $a$  ; une deuxième fente de largeur  $a + l$  est insérée à une distance  $d/2$  de la première. (b) et (d) Diagrammes de dispersion résolus en angle en fonction du nombre d’onde  $\sigma$  et du vecteur d’onde incident  $k_x^{(0)}$  calculés pour des structures bi-atome de paramètres  $d, t_d, t_m$  identiques, mais  $a$  et  $l$  différents. (c) Spectres de transmission de la structure correspondant à la figure 5.7 (b) à plusieurs angles d’incidence.

la transmission à travers des filtres IR composés de réseaux métalliques à fentes étroites est due à des mécanismes physiques différents suivant la hauteur des réseaux : la résonance est attribuée à des plasmons de surface pour des réseaux de faibles épaisseurs, tandis qu’elle provient de résonances de Fabry-Perot horizontales pour des fentes profondes (cf figure 5.8). Cela a des conséquences importantes sur la conception des filtres à base de réseaux métalliques. Le couplage de l’onde incidente de l’interface supérieure à l’interface inférieure a ainsi une efficacité moindre en présence d’un substrat, cette efficacité diminuant quand l’indice du substrat augmente. Ainsi, des réseaux métalliques suspendus ont été fabriqués pour assurer un niveau de transmission maximum, au détriment de la solidité du dispositif (cf figure 5.4 (b)) et de la simplicité du procédé de fabrication [19].

### 5.3.2 Exemple des filtres Fabry-Perot

L’exemple des filtres Fabry-Perot (FP) permet d’illustrer le fait qu’une transmission maximisée ne constitue pas nécessairement la réponse optique optimale pour un filtre infrarouge. En effet, considérons maintenant un filtre FP passe-bande en transmission constitué d’une couche de diélectrique d’indice  $n_d$  et d’épaisseur  $t_d$  située entre deux interfaces métalliques d’épaisseur  $t_m$  et  $t_{m2}$  et représenté sur la figure 5.9 (a). Supposons ensuite qu’un tel filtre, symétrique (c’est-à-dire avec  $t_m = t_{m2}$ ), a la sélectivité voulue à la longueur d’onde  $\lambda_R$ , avec une transmission satisfaisante. La figure 5.9 (b) montre les spectres de transmission correspondant à la résonance FP d’ordre 3 du filtre pour trois valeurs différentes de  $t_{m2}$  :  $t_m > t_{m2}$ ,  $t_{m2} = t_m$  et  $t_m < t_{m2}$ . La fonction diélectrique de l’or des interfaces métalliques est donnée par le modèle de Drude (métal à pertes) :  $\epsilon_m(\lambda) = 1 - [(\lambda_p/\lambda + i\gamma)\lambda_p/\lambda]^{-1}$



**FIGURE 5.8** – Figure reproduite à partir de la référence [5]. Lignes de champ électrique associées à des filtres IR en transmission à base de réseaux métalliques sur deux périodes (a) pour une épaisseur  $h = 0.6 \mu\text{m}$  à la longueur d'onde de résonance  $\lambda = 3.6 \mu\text{m}$  et (b) pour une épaisseur  $h = 3 \mu\text{m}$  à la longueur d'onde de résonance  $\lambda = 7.5 \mu\text{m}$ .

avec  $\lambda_p = 159 \text{ nm}$  et  $\gamma = 0.0048$  [20,21]<sup>2</sup>. La figure 5.9 (b) permet de supposer qu'il n'est pas possible d'augmenter la transmission sans diminuer la sélectivité ( $t_m > t_{m2}$ ), tandis qu'augmenter la sélectivité s'accompagne d'une diminution de la transmission ( $t_m < t_{m2}$ ). Dans ce cas, diminuer la sélectivité est équivalent à augmenter le facteur de qualité défini comme :  $Q = \frac{\lambda_R}{\Delta\lambda}$  (cf figure 5.9 (b)) ; un léger décalage de la longueur d'onde de résonance par rapport à  $\lambda_R$  est observé en raison des pertes dans le métal pour  $t_m \neq t_{m2}$ <sup>3</sup>. En conclusion, les structures symétriques telles que  $t_m = t_{m2}$  sont optimales pour ce type de filtres, dans le sens où elles représentent un compromis entre une transmission maximale et une sélectivité minimale.

Faire varier l'épaisseur des interfaces métalliques permet en fait d'en changer la réflectivité et donc de modifier la transmission de l'ensemble de la structure. L'expression analytique pour l'intensité  $T$  transmise à travers le filtre FP est :

$$T = \left| \frac{t_{32}t_{21}e^{ik_z t_d}}{1 - r_{212}r_{232}e^{2ik_z t_d}} \right|^2, \quad (5.4)$$

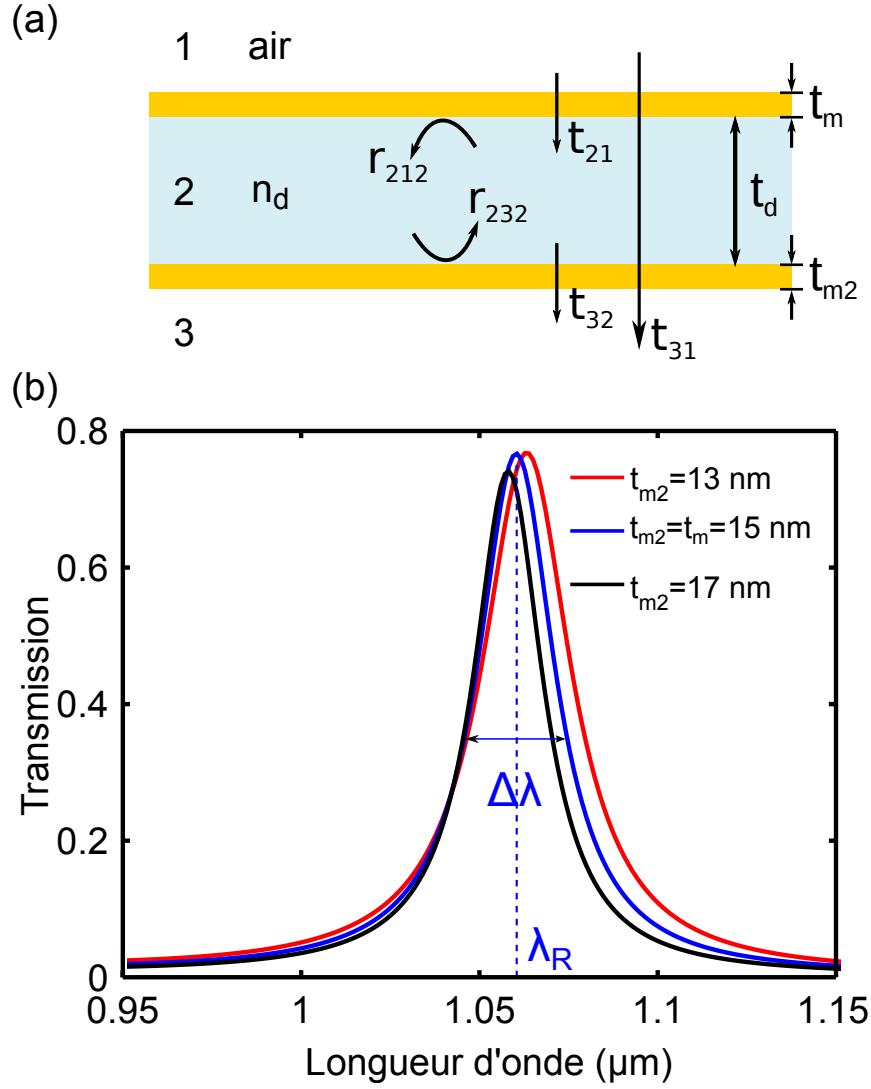
où  $k_z$  est la constante de propagation dans le diélectrique et  $t_{32}$ ,  $t_{21}$ ,  $r_{212}$  et  $r_{232}$  les coefficients de transmission et de réflexion aux interfaces (cf figure 5.9) et par ailleurs  $T = |t_{31}|^2$ .

L'équation modale du système s'écrit :

$$1 - r^2 e^{2ik_z t_d} = 0 \quad (5.5)$$

2. Les paramètres du modèle de Drude utilisés dans cette partie du manuscrit sont différents de ceux utilisés dans la première partie (cf section 3.4) et suivent les références [20] et [21] qui font état de pertes dans l'or moins importantes que pour les grandeurs tabulées de Palik [22] ; cela n'influence cependant pas les conclusions théoriques

3. Les conclusions sont identiques si l'on fixe  $t_{m2}$  et fait varier  $t_m$  ; cependant la réflectivité de deux structures réciproques est la même uniquement quand  $n_d = 1$ , par application du principe de retour inverse de la lumière.



**FIGURE 5.9** – (a) Schéma d'un filtre FP constitué d'une couche de diélectrique d'indice  $n_d$  et d'épaisseur  $t_d$  entourée de deux couches métalliques continues d'épaisseur  $t_m$  et  $t_{m2}$ . (b) Spectres de transmission calculés pour  $t_d = 1.5 \mu\text{m}$ ,  $t_m = 15 \text{ nm}$ ,  $n_d = 1$  et trois valeurs différentes de  $t_{m2}$  :  $t_{m2} = 13 \text{ nm}$ ,  $t_{m2} = t_m = 15 \text{ nm}$  et  $t_{m2} = 17 \text{ nm}$ .

dans le cas où  $r_{212} = r_{232} = r$  (cas symétrique). En posant  $k_z = k'_z + ik''_z$ , l'équation modale 5.5 est équivalente au système

$$\begin{cases} 2k'_z t_d \equiv 0 [2\pi] \\ 2k''_z t_d = -\ln \frac{1}{r^2}. \end{cases} \quad (5.6)$$

On pose également :  $\tilde{\omega} = \omega' - i\omega'' = \frac{k_z c}{n_d}$ . L'énergie moyenne stockée dans le système est proportionnelle à  $|e^{-i\tilde{\omega}t}|^2$ , c'est-à-dire à  $e^{-2\omega''t}$  ; un temps caractéristique de la cavité Fabry-Perot est ainsi défini tel que  $\tau_c = 1/\omega''$ . Finalement, le facteur de qualité défini autrement par  $Q = \tilde{\omega}\tau_c$ , a une expression analytique pour une cavité Fabry-Perot :

$$Q = \frac{k_0}{2} \cdot \frac{r^{1/2}}{1-r} (2n_d t_d), \quad (5.7)$$

dans l'hypothèse de miroirs très réfléchissants ( $-\frac{1}{\ln r} \approx \frac{r^{1/2}}{1-r}$ ).

## 5.4 Conclusion

Les applications liées au rayonnement infrarouge consistent à imager, détecter et filtrer l'émission thermique des corps. L'élaboration de dispositifs dans cette gamme spectrale a conduit successivement les membres de notre équipe à proposer de nouveaux concepts de filtres IR, basés sur différents principes physiques.

Les filtres tout-métalliques peuvent être utilisés comme filtres passe-bande en exploitant le phénomène de transmission extraordinaire. Cependant, les filtres métal-diélectriques à résonance de mode guidé (GMR) sont préférés à ces derniers pour certaines applications, en raison de la forme symétrique des pics et d'une meilleure efficacité de réjection. Formés typiquement en associant un guide d'onde diélectrique et un réseau métallique placé au-dessus, la réjection de ces filtres GMR peut être considérablement améliorée sur une large bande spectrale en ajoutant un deuxième réseau de l'autre côté du guide d'onde ; le principe consiste alors à profiter d'un phénomène d'extinction extraordinaire survenant loin du pic de résonance. L'optimisation de la tolérance angulaire est assurée par une structuration "bi-atome" des réseaux métalliques, avec deux fentes par période.

L'ajout d'un réseau de l'autre côté du guide d'onde rend cependant les structures suspendues plus difficiles à réaliser : fabriquer ces filtres sur substrat est alors la solution envisagée. Une telle structure posée sur un substrat est dissymétrique. Il convient dès lors de comprendre l'influence de la symétrie sur la réponse optique des filtres GMR, afin d'adapter la conception des filtres sur substrat et garantir des maxima de transmission et facteurs de qualité optimaux : c'est l'objet des chapitres suivants.

## Références

- [1] G. Kirchhoff, "Ueber das verhältniss zwischen dem emissionsvermögen und dem absorptionsvermögen der körper für wärme und licht," *Annalen der Physik* **185**, 275–301 (1860).
- [2] B. Portier, "Concepts 2d et 3d de résonateurs sub-longueur d'onde pour application à la photodétection," Ph.D. thesis, Ecole Polytechnique X (2013).
- [3] G. Vincent, "Subwavelength metallic gratings, applications to infrared optics." Thèse, Université Paris Sud - Paris XI (2008).
- [4] S. Collin, G. Vincent, R. Haïdar, N. Bardou, S. Rommeluère, and J.-L. Pelouard, "Nearly perfect fano transmission resonances through nanoslits drilled in a metallic membrane," *Phys. Rev. Lett.* **104**, 027401 (2010).
- [5] J. Porto, F. García-Vidal, and J. Pendry, "Transmission resonances on metallic gratings with very narrow slits," *Physical review letters* **83**, 2845 (1999).
- [6] E. Sakat, "Metal-dielectric guided mode resonance structures and applications to filtering and infrared imaging," Thèse, Ecole Polytechnique X (2013).
- [7] S. S. Wang, M. G. Moharam, R. Magnusson, and J. S. Bagby, "Guided-mode resonances in planar dielectric-layer diffraction gratings," *J. Opt. Soc. Am. A* **7**, 1470–1474 (1990).

- [8] R. Magnusson and S. S. Wang, “New principle for optical filters,” *Applied Physics Letters* **61**, 1022–1024 (1992).
- [9] Y. Ding and R. Magnusson, “Doubly resonant single-layer bandpass optical filters,” *Optics letters* **29**, 1135–1137 (2004).
- [10] E. Sakat, G. Vincent, P. Ghenuche, N. Bardou, S. Collin, F. Pardo, J.-L. Pelouard, and R. Haïdar, “Guided mode resonance in subwavelength metallodielectric free-standing grating for bandpass filtering,” *Opt. Lett.* **36**, 3054–3056 (2011).
- [11] E. Sakat, G. Vincent, P. Ghenuche, N. Bardou, C. Dupuis, S. Collin, F. Pardo, R. Haïdar, and J.-L. Pelouard, “Free-standing guided-mode resonance band-pass filters : from 1d to 2d structures,” *Opt. Express* **20**, 13082–13090 (2012).
- [12] U. Fano, “Effects of configuration interaction on intensities and phase shifts,” *Physical Review* **124**, 1866 (1961).
- [13] J. Le Perchec, R. E. de Lamaestre, M. Brun, N. Rochat, O. Gravrand, G. Badano, J. Hazart, and S. Nicoletti, “High rejection bandpass optical filters based on sub-wavelength metal patch arrays,” *Optics express* **19**, 15720–15731 (2011).
- [14] T. Estruch, J. Jaeck, F. Pardo, S. Derelle, J. Primot, J.-L. Pelouard, and R. Haïdar, “Perfect extinction in subwavelength dual metallic transmitting gratings,” *Opt. Lett.* **36**, 3160–3162 (2011).
- [15] F. Lemarchand, A. Sentenac, and H. Giovannini, “Increasing the angular tolerance of resonant grating filters with doubly periodic structures,” *Optics letters* **23**, 1149–1151 (1998).
- [16] F. Lemarchand, A. Sentenac, E. Cambril, and H. Giovannini, “Study of the resonant behaviour of waveguide gratings : increasing the angular tolerance of guided-mode filters,” *Journal of Optics A : Pure and Applied Optics* **1**, 545 (1999).
- [17] E. Sakat, S. Héron, P. Bouchon, G. Vincent, F. Pardo, S. Collin, J.-L. Pelouard, and R. Haïdar, “Metal-dielectric bi-atomic structure for angular-tolerant spectral filtering,” *Opt. Lett.* **38**, 425–427 (2013).
- [18] C. Tardieu, T. Estruch, G. Vincent, J. Jaeck, N. Bardou, S. Collin, and R. Haïdar, “Extraordinary optical extinctions through dual metallic gratings,” *Optics Letters* **40**, 661–664 (2015).
- [19] G. Vincent, S. Collin, N. Bardou, J.-L. Pelouard, and R. Haïdar, “Large-area dielectric and metallic freestanding gratings for mid-infrared optical filtering applications,” *Journal of Vacuum Science & Technology B* **26**, 1852–1855 (2008).
- [20] C. Koechlin, P. Bouchon, F. Pardo, J. Jaeck, X. Lafosse, J.-L. Pelouard, and R. Haïdar, “Total routing and absorption of photons in dual color plasmonic antennas,” *Applied Physics Letters* **99**, 241104 (2011).
- [21] R. L. Olmon, B. Slovick, T. W. Johnson, D. Shelton, S.-H. Oh, G. D. Boreman, and M. B. Raschke, “Optical dielectric function of gold,” *Phys. Rev. B* **86**, 235147 (2012).
- [22] E. D. Palik, *Handbook of optical constants of solids*, vol. 3 (Academic press, 1998).



## Chapitre 6

# Symétrisation de filtres métal-diélectriques à résonance de mode guidé

Dans ce chapitre, j'introduis un formalisme matriciel pour concevoir des filtres GMR métal-diélectriques. Seuls quelques modes sont nécessaires pour décrire entièrement les systèmes étudiés. Par conséquent, la taille des matrices  $S$  utilisées dans le calcul de la réponse optique peut donc être réduite. Dans ces conditions, une expression scalaire simple de la transmission est dérivée. Par analogie avec un résonateur de Fabry-Perot, un critère de symétrie est formulé. Finalement, je montre que ce critère peut être satisfait même pour des structures GMR sur substrat et que cela conduit à des maxima de transmission et des facteurs de qualité optimaux.

Les filtres GMR métal-diélectriques ont été introduits dans le chapitre 5. Utilisés comme filtres IR passe-bande, ils peuvent conduire à la conception de structures insensibles à la polarisation [1, 2] ou encore tolérantes angulairement [3]. Ces filtres sont typiquement composés d'un guide d'onde en diélectrique surmonté d'un réseau métallique 1D ou 2D [4, 5]. L'ajout d'un autre réseau métallique de l'autre côté du guide d'onde permet d'améliorer l'efficacité de réjection sur une large bande spectrale en exploitant un phénomène d'extinction extraordinaire se produisant loin du pic de résonance [6]. Cependant, ce deuxième réseau rend impossible la réalisation de structures suspendues [7], sauf à encapsuler les deux réseaux à l'intérieur d'une membrane en SiNx [8]. L'alternative choisie pour la conception de filtres GMR consiste à utiliser des substrats, cette solution ayant l'avantage d'assurer une plus grande robustesse. Néanmoins, l'introduction d'un substrat crée une dissymétrie entre l'interface supérieure et l'interface inférieure de la structure qui peut influencer les performances du filtre, à l'instar d'autres types de filtres. Par exemple, pour des filtres FP sans perte, une transmission de 100% n'est atteinte que pour des systèmes symétriques et pour les filtres FP avec pertes examinés dans la sous-section 5.3.2, maximiser la transmission en dissymétrisant les interfaces conduit à une dégradation du facteur de qualité. L'importance de la symétrie a été également mise en évidence pour des réseaux tout-métalliques, comme ceux décrits par Porto *et al.* [9] et étudiés par notre équipe [10, 11]. Ce chapitre a donc pour objectif de comprendre l'influence de la symétrie sur la réponse optique des filtres GMR métal-diélectriques afin de concevoir des structures sur substrat optimales.

## 6.1 Formalisme matriciel

Les résonances de mode guidé sont typiquement définies par le couplage de la lumière incidente à un guide d'onde par l'intermédiaire d'ordres diffractés créés par un réseau périodique [12, 13]. En particulier, la référence [1] montre que la résonance de mode guidé est due au couplage entre les ordres  $\pm 1$  diffractés par un réseau métallique et les modes guidés de la couche de diélectrique.

La structure GMR métal-diélectrique étudiée est composée de deux réseaux d'or unidimensionnels identiques avec une couche de carbure de silicium (SiC) entre les deux, comme le montre la figure 6.1 (a). La période  $d$  du réseau et l'épaisseur  $t_d$  de la couche de SiC sont les deux principaux paramètres qui pilotent la longueur d'onde de résonance [4, 5] ;  $d$  est aussi choisie de telle façon qu'il n'y a pas de propagation d'ordres diffractés dans l'air. En conséquence, le spectre de transmission tracé sur la figure 6.1 (b) correspond à la transmittance de l'ordre 0. L'efficacité du guidage dans la couche de diélectrique est assurée par la forte réflectivité des interfaces métalliques : l'épaisseur  $t_m$  de métal est choisie suffisamment grande et la largeur des fentes  $a$  suffisamment petite. Sous ces conditions, seule la lumière polarisée TM, c'est-à-dire avec le champ  $\mathbf{H}_y$  parallèle aux fentes est transmise par les réseaux métalliques [14, 15].

### 6.1.1 Analyse de la résonance

En premier lieu, un spectre de transmission est calculé avec la méthode RMCA<sup>1</sup> (*Rigorous Maxwell Constitutive Approximation* en anglais) en considérant tous les ordres diffractés, et en prenant  $N$  points de maillage ( $N \approx 100$ ), une permittivité du SiC fixée à  $\epsilon_d = 2.84^2$  et une fonction diélectrique de l'or donnée par le modèle de Drude (les paramètres utilisés sont indiqués page 77). Le SiC est ici préféré au SiNx d'indice plus faible pour constituer le guide d'onde ; en effet, le SiC permet d'avoir un meilleur contraste d'indice entre le guide d'onde et le milieu extérieur ; de plus contrairement au SiNx il ne présente pas de bandes d'absorption autour de 3 et 4.6  $\mu\text{m}$  (cf page 41) qui pourraient dégrader le pic de transmission. Le spectre correspondant au calcul complet sur la figure 6.1 (b) (ligne en trait plein) présente deux pics de résonance à  $\lambda_a = 4.65 \mu\text{m}$  et  $\lambda_b = 4.04 \mu\text{m}$ . La résonance "b" est de très faible intensité comparée à la résonance "a" avec une transmission atteignant 80%.

En second lieu, un autre spectre de transmission est calculé en ne considérant cette fois qu'un petit nombre  $m$  d'ordres diffractés dans le guide d'onde, ce qui se traduit par une réduction de la taille des matrices intervenant dans le calcul définies sur la figure 6.1 (c). En appliquant un formalisme de matrices S, la matrice correspondant à l'amplitude de la transmission à travers toute la structure s'écrit

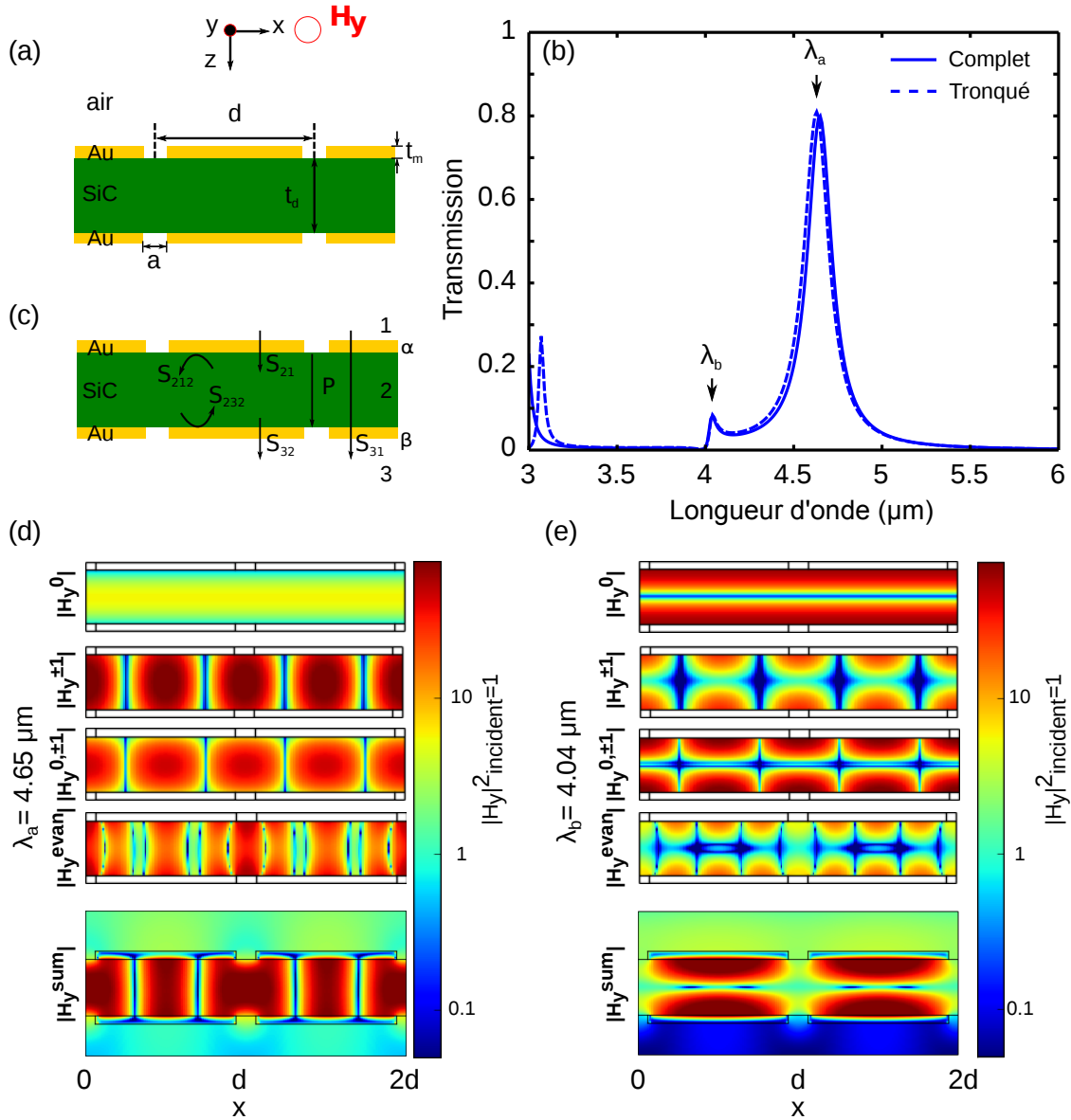
$$S_{31} = S_{32} P^{1/2} \left( \sum_{k=0}^{\infty} (P^{1/2} S_{212} P S_{232} P^{1/2})^k \right) P^{1/2} S_{21}, \quad (6.1)$$

ou encore, en supposant que la série géométrique converge

$$S_{31} = S_{32} P^{1/2} (I - P^{1/2} S_{212} P S_{232} P^{1/2})^{-1} P^{1/2} S_{21}, \quad (6.2)$$

1. La méthode RMCA a été traduite pour des géométries 1D en un code développé par Fabrice Pardo sous langage Matlab, celui utilisé pour effectuer les calculs des chapitres 6 et 7 ; la méthode a été étendue à des géométries 2D par Benjamin Portier [16].





**FIGURE 6.1** – Réponse optique d'un filtre GMR métal-diélectrique. (a) Schéma du filtre GMR suspendu (entouré d'air). Les paramètres géométriques sont : période du réseau  $d = 2 \mu\text{m}$ , épaisseur de la couche de SiC  $t_d = 700 \text{ nm}$ , épaisseur de métal  $t_m = 100 \text{ nm}$  et largeur de la fente  $a = 250 \text{ nm}$ . (b) Spectres de transmission à incidence normale de la structure métal-diélectrique en considérant tous les ordres diffractés (ligne continue) et en ne considérant que les trois premiers ordres diffractés (ligne pointillée). (c) Schéma de la structure GMR et définition des matrices  $S$  intervenant dans le calcul du spectre de transmission. Cartes de distribution du champ magnétique total  $\mathbf{H}_y^{\text{sum}}$  et des contributions  $\mathbf{H}_y^{\pm 1}$ ,  $\mathbf{H}_y^{0,\pm 1}$  et  $\mathbf{H}_y^{\text{evan}}$  : à (d)  $\lambda_a = 4.65 \mu\text{m}$  et (e)  $\lambda_b = 4.04 \mu\text{m}$ .

$I$  étant la matrice identité  $m \times m$ . Les matrices  $S_{32}$  et  $S_{21}$  décrivent la transmission des ordres diffractés à travers les réseaux métalliques. Seul l'ordre 0 qui est propagatif est considéré dans le milieu d'entrée 1 et le milieu de sortie 3. Ainsi, la matrice  $S_{32}$  est en fait un vecteur ligne de taille  $1 \times m$ , et la matrice  $S_{21}$  un vecteur colonne de taille  $m \times 1$ . Les matrices  $S_{232}$  et  $S_{212}$  sont des matrices carrées de taille  $m$  décrivant la diffraction des ordres dans le milieu 2 à la réflexion sur les réseaux métalliques.  $P = (p_{ij})$  est une matrice diagonale avec ses composantes  $p_{jj} = e^{ik_z^{(j)} t_d}$ , avec  $1 \leq j \leq m$  ; par exemple  $k_z^{(0)}$ ,  $k_z^{(1)}$

et  $k_z^{(2)}$  sont les constantes de propagation des ordres 0, +1 et -1 dans le guide d'onde. Finalement, la transmission de la structure entière est  $T = |S_{31}|^2$ .

Une réponse tronquée considérant les ordres 0, +1 et -1, c'est-à-dire avec  $m = 3$  est calculée (résultat non montré). Toutefois, un résultat identique est obtenu en simplifiant davantage, puisque l'ordre +1 et l'ordre -1 sont excités symétriquement à incidence normale : les matrices peuvent donc être globalement réduites de la dimension 3 à la dimension 2. La réponse tronquée avec  $m = 2$  est calculée (ligne pointillée sur la figure 6.1 (b)) et montre un très bon accord avec le calcul complet.

A partir de maintenant,  $S_{21}$  et  $S_{32}$  sont des vecteurs ligne et colonne avec deux composantes et  $P$ ,  $S_{232}$  et  $S_{212}$  sont des matrices  $2 \times 2$  ; 2 étant par ailleurs le nombre de modes minimal permettant de décrire entièrement le système.

Le très bon accord entre les spectres de la réponse exacte et du modèle à deux modes sur la gamme  $3.5 - 6 \mu m$  démontre que seuls les ordres propagatifs jouent un rôle significatif dans la réponse optique, alors que les ordres évanescents ont une influence négligeable. En effet, à l'exception des trois premiers ordres, toutes les autres constantes de propagation  $k_z^{(j)}$  sont imaginaires, donc les composantes  $p_{jj}$  pour  $j \geq 3$  tendent vers 0. De même, la faible divergence observée entre les deux pics pour  $\lambda < 3.5 \mu m$  peut être corrigée en prenant en compte les ordres  $\pm 2$  dans le calcul simplifié. Les figures 6.1 (d) et 6.1 (e) représentent la distribution du champ magnétique à travers la structure GMR à  $\lambda_a = 4.65 \mu m$  et  $\lambda_b = 4.04 \mu m$ . Le champ magnétique total  $\mathbf{H}_y^{\text{sum}}$  est comparé aux contributions  $\mathbf{H}_y^0$ ,  $\mathbf{H}_y^{\pm 1}$  et  $\mathbf{H}_y^{\text{evan}}$  des champs magnétiques de l'ordre 0, des ordres  $\pm 1$  et des ordres évanescents. La contribution  $\mathbf{H}_y^{0,\pm 1}$  qui correspond à l'interférence entre l'ordre 0 et les ordres  $\pm 1$  est également tracée ( $\mathbf{H}_y^{0,\pm 1}$  est le terme croisé visible en développant la somme  $|\mathbf{H}_y^0 + \mathbf{H}_y^{\pm 1}|$ ). A  $\lambda_b$ , la prévalence de l'ordre 0 est due à la résonance de FP, en accord avec la distribution de  $\mathbf{H}_y^{\text{sum}}$  : le champ  $\mathbf{H}_y^0$  invariant suivant  $x$  est légèrement perturbé par le champ  $\mathbf{H}_y^{\pm 1}$   $d$ -périodique. A  $\lambda_a$ , les ordres diffractés  $\pm 1$  dominent ; cela est cohérent avec l'observation au champ  $d/2$ -périodique  $\mathbf{H}_y^{\pm 1}$  de l'onde stationnaire résultant de l'interférence entre les champs  $d$ -périodiques des ordres +1 et -1.

Il faut noter que pour la résonance "a", les cartes de champ montrent des champs évanescents assez intenses. Ces derniers peuvent quand même être négligés dans la mesure où leur propagation dans la couche de SiC n'est pas considérée, tandis qu'ils sont néanmoins pris en compte en compte dans les coefficients matriciels de transmission et de réflexion. Cela pourrait expliquer la différence notable entre les deux spectres sur la figure 6.1 (b), les deux pics ne correspondant pas parfaitement.

### 6.1.2 Calcul de la transmission

La matrice boucle  $M = P^{1/2} S_{212} P S_{232} P^{1/2}$  est introduite. Elle fait référence aux réflexions multiples sur les réseaux métalliques et à la propagation à l'intérieur de la couche de SiC des ordres 0 et  $\pm 1$ . Diagonaliser  $M$  permet d'écrire  $M = \Pi D \Pi^{-1}$  avec  $D = \begin{pmatrix} d_a & 0 \\ 0 & d_b \end{pmatrix}$  ( $\Pi$  étant une matrice de transfert). Finalement l'équation 6.2 est équivalente à

$$S_{31} = S_{32} P^{1/2} \Pi (I - D)^{-1} \Pi^{-1} P^{1/2} S_{21}. \quad (6.3)$$

Ensuite en posant  $\Pi = \begin{pmatrix} \Pi_{0a} & \Pi_{0b} \\ \Pi_{1a} & \Pi_{1b} \end{pmatrix}$ ,  $\Pi^{-1} = \begin{pmatrix} \Pi_{a0} & \Pi_{a1} \\ \Pi_{b0} & \Pi_{b1} \end{pmatrix}$ ,  $S_{32} = \begin{pmatrix} s_0^\beta & s_1^\beta \end{pmatrix}$ ,  $S_{21} = \begin{pmatrix} s_0^\alpha \\ s_1^\alpha \end{pmatrix}$  et  $P^{1/2} = \begin{pmatrix} p_0^{1/2} & 0 \\ 0 & p_1^{1/2} \end{pmatrix}$  (avec  $p_0 = e^{ik_z^{(0)}t_d}$ ,  $p_1 = e^{ik_z^{(\pm 1)}t_d}$ ) et en développant l'équation 6.3, une expression scalaire est obtenue pour l'amplitude de la transmission

$$S_{31} = (\Pi_{0a}p_0^{1/2}s_0^\beta + \Pi_{1a}p_1^{1/2}s_1^\beta) \frac{1}{1-d_a} (\Pi_{a0}p_0^{1/2}s_0^\alpha + \Pi_{a1}p_1^{1/2}s_1^\alpha) + (\Pi_{0b}p_0^{1/2}s_0^\beta + \Pi_{1b}p_1^{1/2}s_1^\beta) \frac{1}{1-d_b} (\Pi_{b0}p_0^{1/2}s_0^\alpha + \Pi_{b1}p_1^{1/2}s_1^\alpha) \quad (6.4)$$

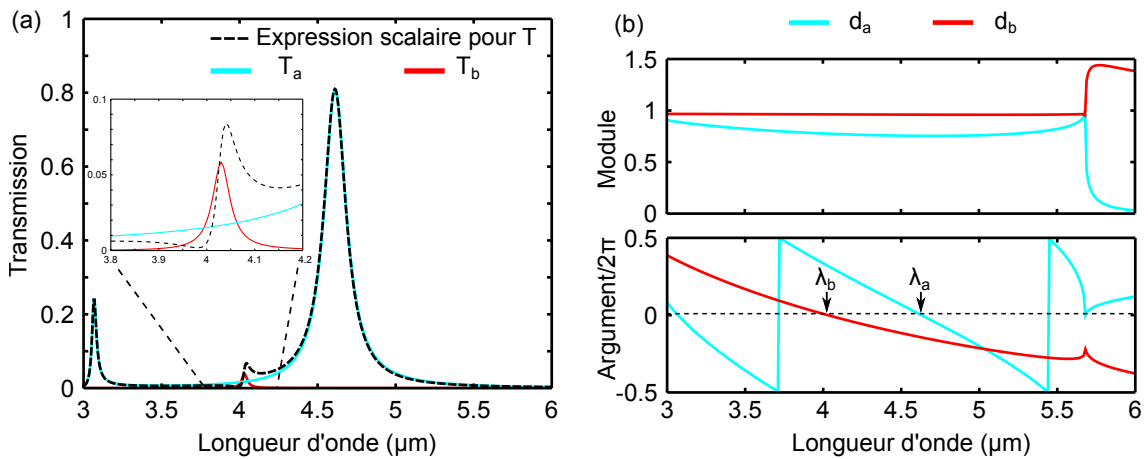
La figure 6.2 (a) montre que le spectre de transmission peut être divisé en deux parties en accord avec l'expression scalaire à deux termes établie pour l'intensité de la transmission

$$T = |S_{31}|^2 \approx T_a + T_b, \quad (6.5)$$

avec explicitement :

- $T_a = |(\Pi_{0a}p_0^{1/2}s_0^\beta + \Pi_{1a}p_1^{1/2}s_1^\beta)(\Pi_{a0}p_0^{1/2}s_0^\alpha + \Pi_{a1}p_1^{1/2}s_1^\alpha)/(1-d_a)|^2$ ,
- $T_b = |(\Pi_{0b}p_0^{1/2}s_0^\beta + \Pi_{1b}p_1^{1/2}s_1^\beta)(\Pi_{b0}p_0^{1/2}s_0^\alpha + \Pi_{b1}p_1^{1/2}s_1^\alpha)/(1-d_b)|^2$ .

$T_a$  correspond bien au spectre d'intensité autour de  $\lambda_a$  et  $T_b$  autour de  $\lambda_b$ . De plus, les pics de transmission coïncident à  $\lambda_a$  avec la condition  $\arg(d_a) \equiv 0[2\pi]$  et à  $\lambda_b$  avec  $\arg(d_b) \equiv 0[2\pi]$  (cf figure 6.2 (b)). Ainsi, l'ordre 0 et l'ordre 1 peuvent être vus comme des résonateurs couplés qui interfèrent constructivement quand  $\arg(d_a) \equiv 0[2\pi]$  et  $\arg(d_b) \equiv 0[2\pi]$ .



**FIGURE 6.2** – Expression scalaire pour l'intensité transmise. (a) Spectres de transmission tracés avec l'équation 6.4 séparée en deux termes : terme proportionnel à  $1/1-d_a$  (ligne bleu clair) et terme proportionnel à  $1/1-d_b$ . (b) Tracé des valeurs propres  $d_a$  et  $d_b$  de la matrice boucle  $M$ .

## 6.2 Symétrisation des filtres GMR

### 6.2.1 Critère de symétrie

L'objectif est maintenant d'étudier l'effet de la symétrie sur la résonance "a". Bien que la résonance de FP ne mette en jeu qu'un unique mode associé à une constante de propagation  $k_z$ , deux analogies au moins peuvent être soulignées entre la résonance de Fabry-Perot et la résonance GMR :

- (i) L'expression de  $T_a$  à une forme semblable à l'expression classique de l'intensité transmise à travers une cavité FP d'épaisseur  $t_d$  en fonction des coefficients de transmission et de réflexion de Fresnel rappelée dans le chapitre précédent (cf équation 5.4).
- (ii) la condition de résonance FP est semblable à la condition  $\arg(r_{212}r_{232}e^{2ik_z t_d}) \equiv 0[2\pi]$  pour le résonateur GMR qui définit de même une boucle de résonance.

La valeur propre  $d_a$  de la matrice  $M$  est également la valeur propre de  $(P^{1/2}S_{212}P^{1/2})(P_2^{1/2}S_{232}P_2^{1/2})$ ,  $P^{1/2}$  et  $P_2^{1/2}$  étant semblables aux matrices de propagation associées à des couches diélectriques d'épaisseurs  $t$  et  $t_2$ , telles que  $t_d = t + t_2$ . Finalement, de même qu'une cavité FP symétrique est définie par  $r_{212}e^{ik_z t_d} = r_{232}e^{ik_z t_d}$ , les valeurs propres  $d_{212}$  et  $d_{232}$  des matrices  $P^{1/2}S_{212}P^{1/2}$  et  $P_2^{1/2}S_{232}P_2^{1/2}$  sont introduites. Un critère de symétrie peut alors être formulé, la condition nécessaire s'écrit :  $d_{212} = d_{232}$ .

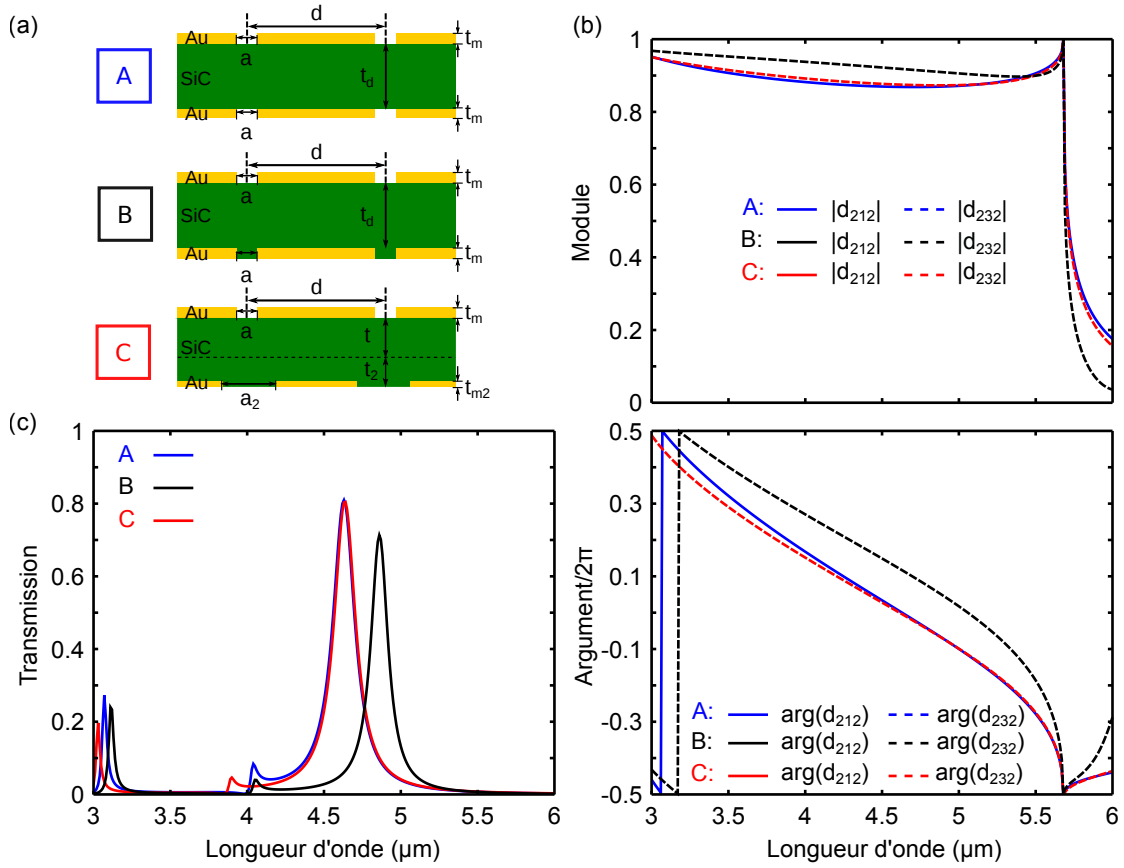
### 6.2.2 Résultats et discussion

#### Symétrisation d'une structure suspendue

La figure 6.3 (a) montre trois structures GMR suspendues  $A$ ,  $B$  et  $C$ . La structure  $A$  est celle de la figure 6.1 (a) : elle est constituée de deux réseaux d'or périodiques identiques avec une couche de SiC entre les deux. La structure  $B$  diffère de la structure  $A$  uniquement par le fait que les fentes du réseaux d'or inférieur sont remplies de SiC. La structure  $B$  est donc asymétrique, en accord avec le fait que  $d_{212} \neq d_{232}$  (sur la figure 6.3 (b), les lignes continues sont associées à  $d_{212}$  et les lignes pointillées à  $d_{232}$ ). Pour restaurer l'égalité, trois degrés de liberté sont disponibles : l'épaisseur  $t_2$  de la partie inférieure de la couche de diélectrique et la largeur de fente  $a_2$  et l'épaisseur  $t_{m2}$  du réseau d'or inférieur. En théorie, trois paramètres sont plus que suffisants pour identifier  $d_{212}$  à  $d_{232}$  à la longueur d'onde de résonance. Pour la structure  $C$ , l'identification est même obtenue sur une large plage de longueurs d'onde. Par conséquent, les pentes de  $d_{212}$  et  $d_{232}$  coïncident également, ce qui conduit en théorie au même facteur de qualité.

#### Calcul du facteur de qualité

Pour dériver l'expression du facteur de qualité, considérons le dénominateur de l'expression scalaire de  $T_a$ . La longueur  $\alpha$  est introduite en posant :  $d_a = |d_a|e^{i\delta k_a \alpha}$  où  $\delta k_a = k_0 - k_a$  avec  $k_0 = 2\pi/\lambda$  et  $k_a = 2\pi/\lambda_a$ . Autour de la longueur d'onde de résonance  $\lambda_a$  l'expression suivante est établie :  $|1 - d_a|^2 \approx (1 - |d_a|)^2 + |d_a|\delta k_a^2 \alpha^2$ . Le facteur de qualité  $Q$  étant défini par  $Q = k_0/2k_{a,1/2}$ , la forme lorentzienne de  $T_a$  permet d'écrire  $|d_a|k_{a,1/2}^2 \alpha^2 = (1 - |d_a|)^2$ . Finalement, on obtient l'expression suivante pour le



**FIGURE 6.3** – Validation du critère de symétrie. (a) Schémas de trois structures GMR suspendues A, B et C. Pour les structures A et B, la période du réseau d'or est  $d = 2 \mu\text{m}$ , l'épaisseur de la couche de SiC est  $t_d = 700 \text{ nm}$ , l'épaisseur de métal est  $t_m = 100 \text{ nm}$  et la largeur de la fente  $a = 250 \text{ nm}$ . Pour la structure C, la période du réseau d'or est  $d = 2 \mu\text{m}$ ; la couche de SiC est divisée en deux parties d'épaisseurs  $t = 350 \text{ nm}$  et  $t_2 = 320 \text{ nm}$ ; les réseaux d'or sont différents, celui du dessus à une épaisseur de  $t_m = 100 \text{ nm}$  et des fentes de largeur  $a = 250 \text{ nm}$ , et celui du dessous a une épaisseur  $t_{m2} = 60 \text{ nm}$  et des fentes de largeur  $a_2 = 250 \text{ nm}$ . (b) Modules et arguments des coefficients  $d_{212}$  et  $d_{232}$  correspondant aux structures A, B et C. (c) Spectres de transmission à incidence normale des structures A, B et C calculés en utilisant l'équation 6.2.

facteur de qualité

$$Q = \frac{k_0}{2} \cdot \frac{|d_a|^{1/2}}{1 - |d_a|} \alpha. \quad (6.6)$$

La longueur  $\alpha$  (resp.  $\beta$  définie de façon similaire par  $d_b = |d_b|e^{i\delta k_b \beta}$ ) peut être extraite numériquement, comme  $\alpha = \delta d_a / \delta k_a$  (on choisira  $\delta k_a = k_0/1000$ ). Pour comprendre l'origine de ces variations de phase,  $d_a$  est dérivée, en considérant  $d_a = \Pi_a^{-1}(P^{1/2}S_{212}P^{1/2})(P_2^{1/2}S_{232}P_2^{1/2})\Pi_a$ , avec  $\Pi_a^{-1} = \begin{pmatrix} \Pi_{a0} & \Pi_{a1} \end{pmatrix}$  et  $\Pi_a = \begin{pmatrix} \Pi_{0a} \\ \Pi_{1a} \end{pmatrix}$ . La différentielle de  $d_a$  peut donc être décomposé au premier

ordre suivant :

$$\begin{aligned}
 \delta d_a = & (\delta \Pi_a^{-1}) P^{1/2} S_{212} P^{1/2} P_2^{1/2} S_{232} P_2^{1/2} \Pi_a \\
 & + \Pi_a^{-1} (\delta P^{1/2}) S_{212} P^{1/2} P_2^{1/2} S_{232} P_2^{1/2} \Pi_a \\
 & + \Pi_a^{-1} P^{1/2} (\delta S_{212}) P^{1/2} P_2^{1/2} S_{232} P_2^{1/2} \Pi_a \\
 & + \Pi_a^{-1} P^{1/2} S_{212} (\delta P^{1/2}) P_2^{1/2} S_{232} P_2^{1/2} \Pi_a \\
 & + \Pi_a^{-1} P^{1/2} S_{212} P^{1/2} (\delta P_2^{1/2}) S_{232} P_2^{1/2} \Pi_a \\
 & + \Pi_a^{-1} P^{1/2} S_{212} P^{1/2} P_2^{1/2} (\delta S_{232}) P_2^{1/2} \Pi_a \\
 & + \Pi_a^{-1} P^{1/2} S_{212} P^{1/2} P_2^{1/2} S_{232} (\delta P^{1/2}) \Pi_a \\
 & + \Pi_a^{-1} P^{1/2} S_{212} P^{1/2} P_2^{1/2} S_{232} P_2^{1/2} (\delta \Pi_a) \\
 & + o(\delta d_a).
 \end{aligned} \tag{6.7}$$

Il apparaît que deux termes de cette somme sont négligeables :

- le premier :  $(\delta \Pi_a^{-1}) P^{1/2} S_{212} P^{1/2} P_2^{1/2} S_{232} P_2^{1/2} \Pi_a$ ,
- le dernier :  $\Pi_a^{-1} P^{1/2} S_{212} P^{1/2} P_2^{1/2} S_{232} P_2^{1/2} (\delta \Pi_a)$ .

Pour un simple filtre Fabry-Perot, les deux termes relatifs à la variation de phase à la réflexion sur les miroirs sont d'ordinares négligeables. Cependant, dans notre cas, les termes associés à la réflexion

- $\Pi_a^{-1} P^{1/2} (\delta S_{212}) P^{1/2} P_2^{1/2} S_{232} P_2^{1/2} \Pi_a$  et
- $\Pi_a^{-1} P^{1/2} S_{212} P^{1/2} P_2^{1/2} (\delta S_{232}) P_2^{1/2} \Pi_a$

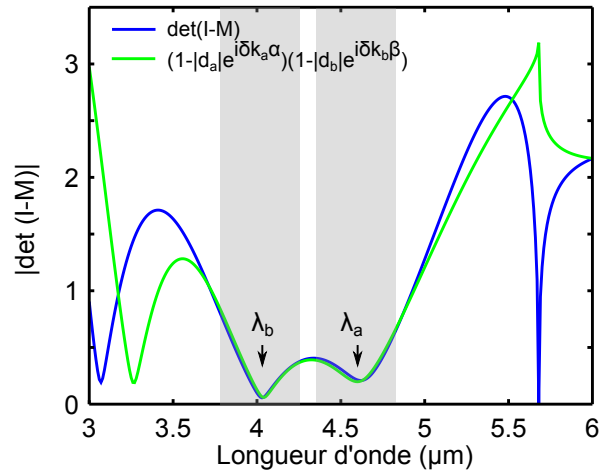
doivent être pris en compte. La figure 6.4 indique que  $\det(I - M) \approx (1 - |d_a|e^{i\delta k_a \alpha})(1 - |d_b|e^{i\delta k_b \beta})$  autour des longueurs d'onde  $\lambda_a$  et  $\lambda_b$ . L'expression 6.6 pour le facteur de qualité et les approximations associées  $d_a \approx |d_a|e^{i\delta k_a \alpha}$  et  $d_b \approx |d_b|e^{i\delta k_b \beta}$  sont donc validées (puisque par ailleurs  $\det(I - M) = \det(I - D)$ ). L'expression 6.6 est donc cohérente avec l'équation modale :

$$\det(I - M) = 0. \tag{6.8}$$

Les deux solutions de l'équation 6.8 sont les fréquences propres complexes  $\omega_a$  et  $\omega_b$  qui permettent de caractériser de façon complète ce système ouvert à pertes [17, 18] le taux d'amortissement du mode "a" est égal à  $\gamma = \Im(\omega_a)$  et le facteur de qualité est aussi défini comme  $Q = \Re(\omega_a)/\gamma$ . L'expression 6.6 pour le facteur de qualité est analogue à celle typiquement donnée pour le facteur de qualité d'un résonateur de Fabry-Perot d'épaisseur  $t_d$  remplie d'un diélectrique d'indice de réfraction  $n_d$  rappelée dans le chapitre précédent (cf équation 5.7).  $\alpha$  est donc similaire à  $2n_d t_d$ , et peut donc être vue comme une longueur de cohérence [19].

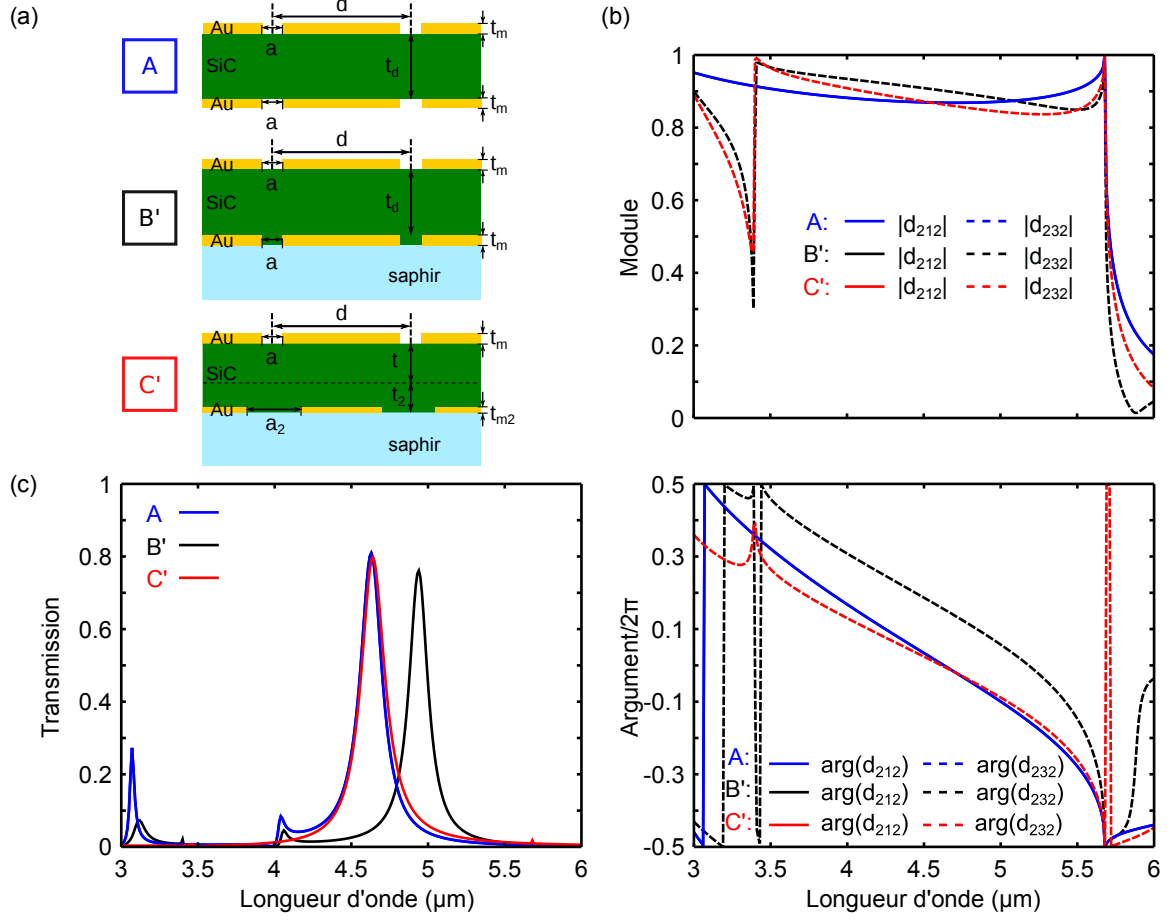
### Symétrisation d'une structure sur substrat

La figure 6.5 montre les résultats de l'approche de symétrisation pour un filtre GMR sur un substrat de saphir. L'utilisation de tous les degrés de liberté conduit à identifier  $|d_{212}|$  à  $|d_{232}|$  à  $\lambda_a$  seulement. Cela permet d'obtenir la structure  $C'$  qui a le même maximum de transmission en terme de position spectral et niveau de transmission que pour la structure suspendue originale  $A$ . Toutefois, la différence



**FIGURE 6.4** – Déterminant en fonction de la longueur d'onde de la matrice  $I-M$  de taille  $2 \times 2$  comparé à l'expression  $(1 - |d_a|e^{i\delta k_a\alpha})(1 - |d_b|e^{i\delta k_b\beta})$  calculée numériquement.

de pente notable entre  $d_{212}$  et  $d_{232}$  est responsable du facteur de qualité légèrement plus faible de la structure  $C'$ .



**FIGURE 6.5** – Symétrisation de filtres sur substrat de saphir d'indice de réfraction 1.7. (a) Schémas de trois structures GMR A, B' et C'. La structure B' a les mêmes paramètres géométriques que la structure B. Pour la structure C' la période du réseau d'or est  $d = 2 \mu\text{m}$ ; la couche de SiC est divisée en deux parties d'épaisseurs  $t = 350 \text{ nm}$  et  $t_2 = 230 \text{ nm}$ ; les réseaux d'or sont différents, celui du dessus à une épaisseur de  $100 \text{ nm}$  et des fentes de largeur  $a = 250 \text{ nm}$ , et celui du dessous a une épaisseur  $t_{m2} = 50 \text{ nm}$  et des fentes de largeur  $a_2 = 290 \text{ nm}$ . (b) Modules et arguments des coefficients  $d_{212}$  et  $d_{232}$  correspondant aux structures A, B' et C'. (c) Spectres de transmission à incidence normale des structures A, B' et C' calculés en utilisant l'équation 6.2.

### 6.3 Conclusion

Un cadre mathématique a été défini pour étudier la symétrie de filtres GMR métal-diélectriques. L'analyse du mécanisme GMR montre que seuls les ordres diffractés propagatifs 0 et  $\pm 1$  (propagatif dans le guide) jouent un rôle significatif dans la réponse optique, alors que les ordres évanescents peuvent être négligés : le système est ainsi parfaitement décrit par deux modes uniquement. Dans ces conditions, la taille des matrices S considérées dans la méthode de calcul RMCA est réduite. Le développement des expressions matricielles pour l'amplitude de la transmission conduit à une expression scalaire compacte pour l'intensité transmise à travers les structures GMR. Un critère de symétrie est alors formulé en remarquant des analogies entre cette expression et celle pour des filtres Fabry-Perot. Satisfaire ce critère de symétrie en adaptant les paramètres géométriques à la longueur d'onde de résonance permet de restaurer le même maximum de transmission et le même facteur de qualité que la



structure symétrique suspendue originale. Ce principe peut être appliqué à des structures GMR sur substrat, permettant la conception de réponses optiques optimales.

Ce formalisme peut être généralisé pour la description de systèmes optiques basés sur des interactions multi-modes [20]. Un nombre trop important de modes pourra alors être considéré comme la limite de cette approche, car les expressions scalaires compactes véritablement utiles à la conception ne pourront pas être établies.

## Références

- [1] E. Sakat, G. Vincent, P. Ghenuche, N. Bardou, C. Dupuis, S. Collin, F. Pardo, R. Haïdar, and J.-L. Pelouard, “Free-standing guided-mode resonance band-pass filters : from 1d to 2d structures,” *Opt. Express* **20**, 13082–13090 (2012).
- [2] C.-H. Park, Y.-T. Yoon, and S.-S. Lee, “Polarization-independent visible wavelength filter incorporating a symmetric metal-dielectric resonant structure,” *Optics express* **20**, 23769–23777 (2012).
- [3] E. Sakat, S. Héron, P. Bouchon, G. Vincent, F. Pardo, S. Collin, J.-L. Pelouard, and R. Haïdar, “Metal-dielectric bi-atomic structure for angular-tolerant spectral filtering,” *Opt. Lett.* **38**, 425–427 (2013).
- [4] E. Sakat, G. Vincent, P. Ghenuche, N. Bardou, S. Collin, F. Pardo, J.-L. Pelouard, and R. Haïdar, “Guided mode resonance in subwavelength metallodielectric free-standing grating for bandpass filtering,” *Opt. Lett.* **36**, 3054–3056 (2011).
- [5] J. Le Perchec, R. E. de Lamaestre, M. Brun, N. Rochat, O. Gravrand, G. Badano, J. Hazart, and S. Nicoletti, “High rejection bandpass optical filters based on sub-wavelength metal patch arrays,” *Optics express* **19**, 15720–15731 (2011).
- [6] T. Estruch, J. Jaeck, F. Pardo, S. Derelle, J. Primot, J.-L. Pelouard, and R. Haïdar, “Perfect extinction in subwavelength dual metallic transmitting gratings,” *Opt. Lett.* **36**, 3160–3162 (2011).
- [7] G. Vincent, S. Collin, N. Bardou, J.-L. Pelouard, and R. Haïdar, “Large-area dielectric and metallic freestanding gratings for midinfrared optical filtering applications,” *Journal of Vacuum Science & Technology B* **26**, 1852–1855 (2008).
- [8] C. Tardieu, T. Estruch, G. Vincent, J. Jaeck, N. Bardou, S. Collin, and R. Haïdar, “Extraordinary optical extinctions through dual metallic gratings,” *Optics Letters* **40**, 661–664 (2015).
- [9] J. Porto, F. García-Vidal, and J. Pendry, “Transmission resonances on metallic gratings with very narrow slits,” *Physical review letters* **83**, 2845 (1999).
- [10] R. Haïdar, G. Vincent, S. Collin, N. Bardou, N. Guérineau, J. Deschamps, and J.-L. Pelouard, “Free-standing subwavelength metallic gratings for snapshot multispectral imaging,” *Applied Physics Letters* **96**, 221104 (2010).
- [11] S. Collin, G. Vincent, R. Haïdar, N. Bardou, S. Rommeluère, and J.-L. Pelouard, “Nearly perfect fano transmission resonances through nanoslits drilled in a metallic membrane,” *Phys. Rev. Lett.* **104**, 027401 (2010).
- [12] S. S. Wang, M. G. Moharam, R. Magnusson, and J. S. Bagby, “Guided-mode resonances in planar dielectric-layer diffraction gratings,” *J. Opt. Soc. Am. A* **7**, 1470–1474 (1990).

- [13] R. Magnusson and S. S. Wang, “New principle for optical filters,” *Applied Physics Letters* **61**, 1022–1024 (1992).
- [14] P. Lalanne, J.-P. Hugonin, S. Astilean, M. Palamaru, and K. D. Möller, “One-mode model and airy-like formulae for one-dimensional metallic gratings,” *Journal of Optics A : Pure and Applied Optics* **2**, 48 (2000).
- [15] S. Collin, F. Pardo, and J.-L. Pelouard, “Waveguiding in nanoscale metallic apertures,” *Opt. Express* **15**, 4310–4320 (2007).
- [16] B. Portier, F. Pardo, P. Bouchon, R. Haïdar, and J.-L. Pelouard, “Fast modal method for crossed grating computation, combining finite formulation of maxwell equations with polynomial approximated constitutive relations,” *J. Opt. Soc. Am. A* **30**, 573–581 (2013).
- [17] P. T. Leung, S. Y. Liu, and K. Young, “Completeness and orthogonality of quasinormal modes in leaky optical cavities,” *Phys. Rev. A* **49**, 3057–3067 (1994).
- [18] R. K. Chang and A. J. Campillo, *Optical processes in microcavities*, Adv. Ser. Appl. Phys. (World Scientific, Singapore, 1996).
- [19] B. E. A. Saleh and M. C. Teich, *Fundamentals of Photonics* (John Wiley & Sons, Inc., 2001).
- [20] V. Karagodsky, C. Chase, and C. J. Chang-Hasnain, “Matrix fabry-perot resonance mechanism in high-contrast gratings,” *Opt. Lett.* **36**, 1704–1706 (2011).

## Chapitre 7

# Conception de filtres GMR tolérants angulairement sur substrat

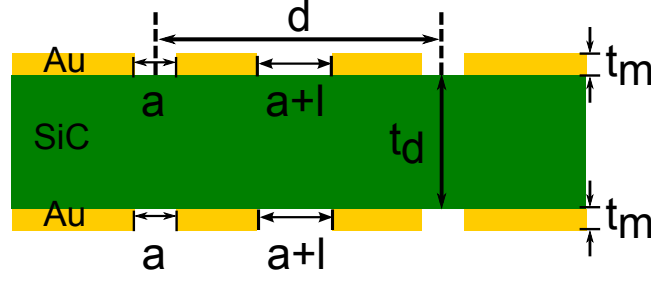
Le formalisme matriciel décrit dans le chapitre 6 est maintenant appliqué à la conception de filtres GMR tolérants angulairement à partir de la structure bi-atome métal-diélectrique. Pour des raisons de robustesse et de faisabilité technologique, la fabrication de cette structure sur substrat est envisagée. Une couche anti-reflet optimisée est associée au substrat, ce qui permet finalement de restaurer la symétrie de la structure et d'assurer une large tolérance angulaire et une bonne efficacité de réjection angulaire. Je montre comment cette solution peut être transposée en bande III à des filtres 2D dans le but de concevoir des limiteurs de champ.

### 7.1 Introduction

Les résonances de mode guidé (GMR, *Guided-Mode Resonance*) sont typiquement dues au couplage de la lumière incidente avec les modes propres d'un guide d'onde via la diffraction par un réseau. Introduite dans le chapitre 5, la structure bi-atome est choisie pour améliorer la tolérance angulaire généralement faible des filtres à base de résonance de mode guidé. Initialement proposée par Lemarchand *et al.* pour des filtres tout-diélectriques [1, 2], cette structuration a été adaptée par Émilie Sakat au cours de sa thèse pour des filtres composés de réseaux métalliques et d'un guide d'onde diélectrique (cf figure 7.1) [3]. Le terme "bi-atome" fait alors référence à la présence de deux fentes pour chaque période du réseau.

Une tolérance angulaire remarquable est obtenue en ajustant les largeurs  $a$  et  $a + l$  des fentes de façon à obtenir une bande de dispersion plate [4]. De plus, comme cela est expliqué dans le chapitre 5, deux réseaux métalliques de chaque côté du guide d'onde sont nécessaires pour obtenir une bonne efficacité de réjection sur une large bande spectrale en exploitant un phénomène d'extinction extraordinaire loin du pic de résonance [5] renforce encore cette efficacité.

Cependant, alors que les calculs de réponse optique sont effectués en considérant des filtres bi-atome dans l'air, la réalisation de structures suspendues dans ce cas n'est possible qu'en encapsulant les réseaux métalliques dans des membranes diélectriques, car l'or est un matériau trop ductile pour être à la base d'une structure suspendue ; la solution de l'encapsulation, expérimentée par Tardieu *et al.* [6], présente néanmoins deux inconvénients :



**FIGURE 7.1** – Schéma de la structure bi-atome métal-diélectrique composée de deux réseaux d'or identiques de période  $d$  et d'épaisseur  $t_m$  et d'un guide d'onde en SiC d'épaisseur  $t_d$  ; les fentes des réseaux sont de largeur  $a$  et  $a + l$ .

- (i) faible résistance mécanique d'une structure suspendue,
- (ii) déformation de la surface supérieure de la couche de diélectrique due à la conservation du profil topographique des réseaux d'or au cours du dépôt de SiNx (cf annexe B).

Une fabrication sur substrat est donc préférable pour assurer une plus grande solidité à la structure ; un procédé est proposé en annexe B, dans le d'éviter la déformation de la surface de diélectrique en utilisant une résine planarisante.

Dans la plupart des cas cependant, l'introduction d'un substrat entraîne une dissymétrie qui dégrade les performances des filtres. Le formalisme développé dans le chapitre 6 est finalement appliqué à la symétrisation des filtres GMR bi-atome.

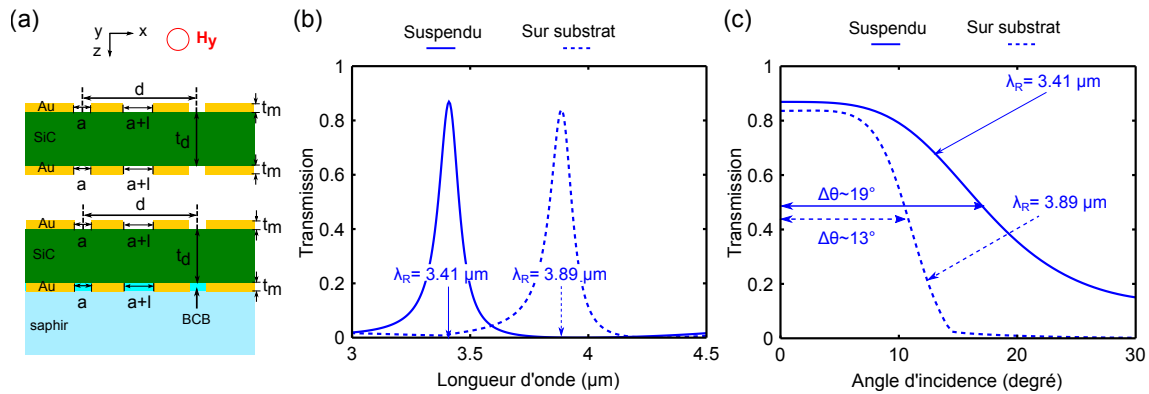
## 7.2 Travaux préliminaires

Avant d'appliquer le formalisme matriciel de symétrisation, des travaux préliminaires m'ont permis d'évaluer la possibilité et la pertinence de ma première approche, cette dernière consistant à concevoir et fabriquer une structure bi-atome sur substrat en transposant directement la structure suspendue sans changer les paramètres géométriques. Un substrat de saphir est choisi pour son relativement faible indice de réfraction ( $\sim 1.7$ ) et sa transparence dans le domaine infrarouge jusqu'à  $5.5 \mu\text{m}$ . Un substrat de faible indice permet de maximiser la transmission à l'interface substrat/air et donc la transmission totale de la structure, et permet également de conserver un effet de guide d'onde par réflexion totale interne des ordres  $\pm 1$  dans la couche diélectrique de fort indice. Cette couche sera du SiC d'indice  $n_d = 2.84$ . Le procédé de fabrication sur substrat proposé dans l'annexe B prévoit l'utilisation d'une résine planarisante d'indice optique proche de celui du saphir. La faisabilité de ce procédé est également évaluée.

### 7.2.1 Simulations de filtres GMR sur substrat

Des simulations numériques de la réponse optique de filtres bi-atome sont effectuées avec la méthode RMCA déjà utilisée dans le chapitre 6 (cf page 84), en prenant une permittivité du SiC fixée à  $\epsilon_d = n_d^2$  et une fonction diélectrique de l'or donnée par le modèle de Drude (les paramètres du modèle

sont indiqués page 77). Les deux structures, de paramètres géométriques identiques, sont représentées sur la figure 7.2 (a). La réponse optique d'une structure bi-atome suspendue est comparée à celle d'une structure bi-atome posée sur un substrat de saphir d'indice 1.7, les fentes du réseau inférieur étant remplies de résine BCB simulée par un indice de 1.55. La figure 7.2 (b) montre les spectres à incidence normale de chacune des structures et la figure 7.2 (c) montre la transmission en fonction de l'angle d'incidence à la longueur d'onde  $\lambda_R$  correspondant au maximum de transmission à incidence normale. Un décalage spectral est observé entre les deux pics de transmission à incidence normale qui s'explique par l'altération de la condition de couplage : les modes propres du guide d'onde ne sont pas en toute rigueur les mêmes dans les deux cas (symétrique et asymétrique). Les maxima de transmission sont en revanche sensiblement identiques ( $\sim 80\%$ ). Le facteur de mérite de ces filtres angulaires, appelé par extension la tolérance angulaire, est définie comme la demi-largeur à mi-hauteur  $\Delta\theta$  des courbes de la figure 7.2 (c). Dans le cas de la structure suspendue originale,  $\Delta\theta = 19^\circ$  ;  $\Delta\theta = 13^\circ$  dans le cas de la structure sur substrat de saphir. Bien que la structure sur substrat ait une tolérance angulaire moins importante, elle présente néanmoins une meilleure réjection angulaire.

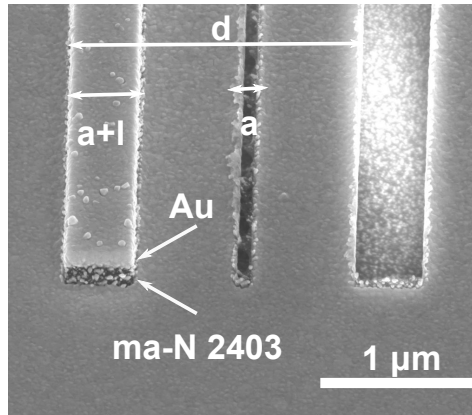


**FIGURE 7.2** – Calcul de la réponse optique de structures bi-atome suspendue et sur substrat de saphir. (a) Schéma des structures bi-atome. Les paramètres géométriques sont identiques pour les deux structures :  $d = 2 \mu\text{m}$ ,  $a = 150 \text{ nm}$ ,  $l = 400 \text{ nm}$ ,  $t_m = 100 \text{ nm}$ ,  $t_d = 500 \mu\text{m}$ . (b) Spectres de transmission à incidence normale de la structure suspendue (ligne bleue) et de la structure sur substrat (ligne verte). (c) Transmission à  $\lambda_R = 3.41 \mu\text{m}$  pour la structure suspendue (ligne bleue) et  $\lambda_R = 3.89 \mu\text{m}$  pour la structure sur substrat (ligne verte) en fonction de l'angle d'incidence.

## 7.2.2 Réalisation technologique

Le procédé de fabrication proposé prévoit l'emploi d'une résine négative pour les étapes de lithographie électronique : la ma-N 2403. Le fait d'utiliser une résine négative permet de restreindre les zones à insoler, ce qui permet globalement de diminuer les temps d'insolation puisque seules les zones définissant les fentes d'air sont insolées ; l'autre avantage d'une résine négative est sa précision, les résines positives comme par exemple le PMMA ne permettant pas en général de définir les fentes de largeur de environ  $100 \text{ nm}$  constituant la structure bi-atome dans cette gamme spectrale ; car en effet, il faut insoler toute la surface à l'exception les bandes de  $100 \text{ nm}$  : la résolution de ces résines n'est pas suffisante. Cependant, le lift-off de l'or est rendu plus difficile par l'emploi d'une résine négative dans cette configuration car la surface de résine est réduite. La figure 7.3 témoigne de cette difficulté

en montrant un réseau bi-atome sur lequel une bande de résine recouverte d'or demeure après lift-off. Cette image peut également être vue comme une illustration des difficultés rencontrées pour optimiser les différents paramètres de la lithographie électronique (doses, temps de recuit de la résine, prise en compte des effets de proximité...) particulièrement avec un substrat isolant ; il est toutefois souhaitable de diminuer l'épaisseur des réseaux métalliques pour faciliter le lift-off.

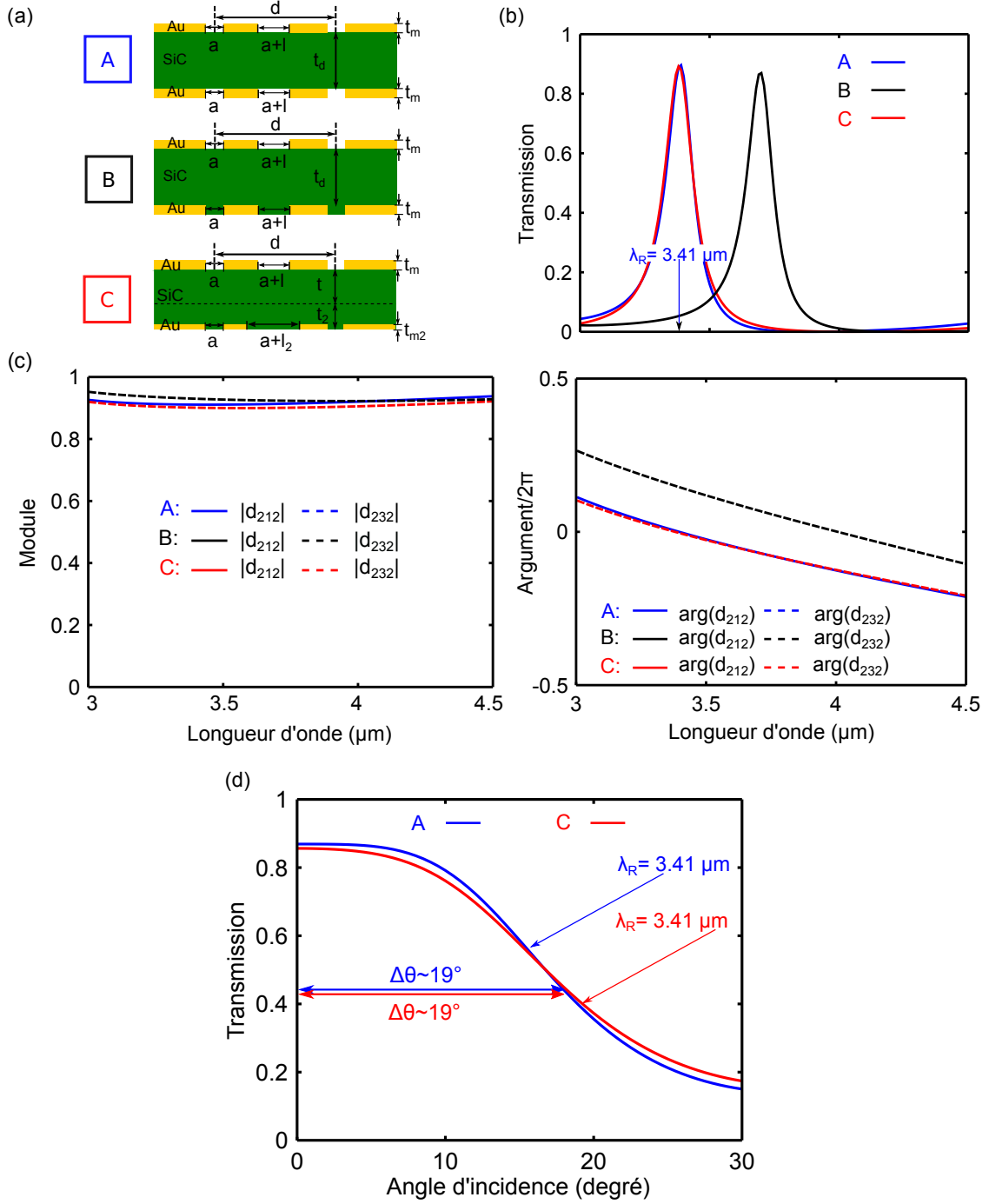


**FIGURE 7.3** – Image par microscopie électronique à balayage d'un réseau d'or "bi-atome" après lift-off de l'or.

Dans le chapitre 6, l'application du formalisme matriciel à des structures asymétriques a permis de restaurer la transmission maximale et le facteur de qualité des filtres GMR symétriques en déterminant une structure homologue par sa réponse optique. Ainsi, adapter ce même formalisme à des structures GMR bi-atome devrait permettre de restituer la tolérance angulaire de la structure symétrique originale. De plus, dans la mesure où la symétrisation des structures considérées dans le chapitre 6 est systématiquement obtenue en diminuant l'épaisseur du réseau métallique inférieur, cette voie de conception des filtres bi-atome est favorable à la réussite du procédé de fabrication : la réduction de l'épaisseur de métal est un avantage pour le lift-off et devrait également permettre d'éviter l'étape critique de la planarisation (on suppose alors qu'un réseau de faible épaisseur n'induit pas de déformation de la surface de diélectrique).

### 7.3 Symétrisation de filtres GMR tolérants angulairement

Le mécanisme de résonance des structures bi-atome est identique à celui des filtres GMR simplement périodiques. En effet, seuls les ordres 0, +1 et -1 se propagent dans la couche guidante en SiC à incidence normale ; puisque les ordres -1 et +1 sont excités de façon symétrique, seuls deux modes sont finalement nécessaires pour décrire la réponse optique des filtres bi-atome. Dans ces conditions, la matrice boucle  $M = P^{1/2} S_{212} P S_{232} P^{1/2}$  peut être introduite et les coefficients  $d_{212}$  et  $d_{232}$  sont également définis (cf pages 86 et 88). Ainsi, pour une structure bi-atome, le critère de symétrie est formulé par la condition déjà décrite :  $d_{212} = d_{232}$ .



**FIGURE 7.4** – Symétrisation d'une structure bi-atome suspendue. (a) Schéma de trois structures bi-atome suspendues A, B et C. Pour les structures A et B, la période du réseau d'or est  $d = 2 \mu\text{m}$ , l'épaisseur de la couche de SiC est  $t_d = 500 \text{ nm}$ , l'épaisseur de métal est  $t_m = 100 \text{ nm}$  et les paramètres des fentes sont  $a = 150 \text{ nm}$  et  $l = 400 \text{ nm}$ . Pour la structure C, la période du réseau d'or est  $d = 2 \mu\text{m}$ ; la couche de SiC est divisée en deux parties d'épaisseurs  $t = 250 \text{ nm}$  et  $t_2 = 240 \text{ nm}$ ; les réseaux d'or sont différents, celui du dessus a une épaisseur de  $t_m = 100 \text{ nm}$  et des fentes de paramètres  $a = 150 \text{ nm}$  et  $l = 400 \text{ nm}$ , et celui du dessous a une épaisseur  $t_{m2} = 30 \text{ nm}$  et des fentes de paramètres  $a = 150 \text{ nm}$  et  $l_2 = 475 \text{ nm}$ . (b) Spectres de transmission à incidence normale des structures A, B et C. (c) Modules et arguments des coefficients  $d_{212}$  et  $d_{232}$  correspondant aux structures A, B et C. (d) Transmission à  $\lambda_R = 3.41 \mu\text{m}$  pour la structure suspendue A (ligne bleue) et  $\lambda_R = 3.41 \mu\text{m}$  pour la structure sur substrat C (ligne rouge) en fonction de l'angle d'incidence.

### 7.3.1 Symétrisation de la structure bi-atome

La figure 7.4 (a) montre trois structures GMR suspendues  $A$ ,  $B$  et  $C$ . La structure  $A$  correspond à la structure suspendue de la figure 7.2 (a) : elle est constituée de deux réseaux d'or bi-atome identiques avec une couche de SiC entre les deux. La structure  $B$  diffère de la structure  $A$  uniquement par le fait que les fentes du réseau d'or inférieur sont remplies de SiC. La structure  $B$  est donc asymétrique puisque que  $d_{212} \neq d_{232}$  (sur la figure 7.4 (b), les lignes continues sont associées à  $d_{212}$  et les lignes pointillées à  $d_{232}$ ). Pour restaurer l'égalité, trois degrés de liberté sont également utilisés : l'épaisseur  $t_2$  de la partie inférieure de la couche de diélectrique et le paramètre de fente  $l_2$  et l'épaisseur  $t_{m2}$  du réseau d'or inférieur. Finalement, la réponse optique de la structure originale  $A$  est restituée : les structures  $A$  et  $C$  présentent presque exactement le même facteur de qualité et le même maximum de transmission à la longueur d'onde  $\lambda_R = 3.41 \mu\text{m}$ .

La figure 7.4 (d) montre la transmission en fonction de l'angle d'incidence à cette longueur d'onde  $\lambda_R = 3.41 \mu\text{m}$  pour les structures  $A$  et  $C$ . En très bon accord, ces courbes amènent à extraire une tolérance angulaire  $\Delta\theta = 19^\circ$  identiques pour les deux structures. La diminution de la transmission avec l'angle se fait suivant la même pente : l'efficacité de réjection angulaire est donc la même pour les deux structures.

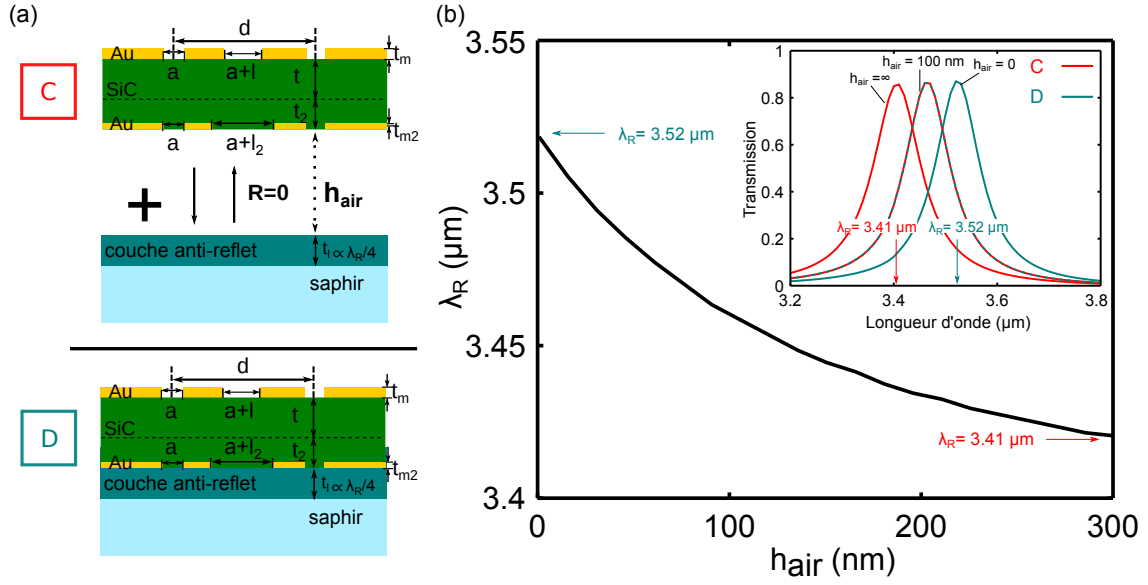
Le principe de symétrisation introduit dans le chapitre 6 pour des filtres GMR simplement périodiques est donc applicable aux filtres GMR bi-atome et permet de concevoir une réponse optique optimale identique à celle des structures symétriques de départ. Dans le cas des structures bi-atome, la caractéristique de tolérance angulaire peut être restaurée.

### 7.3.2 Insertion d'une couche anti-reflet

Une solution alternative consiste alors à intercaler entre la structure suspendue symétrisée  $C$  et le substrat de saphir une couche anti-reflet : une nouvelle structure  $D$  est ainsi formée (cf figure 7.5 (a)), comme cela a été fait dans les références [7, 8]. L'épaisseur  $t_l$  de la couche anti-reflet est choisie de façon à supprimer la réflexion sur le substrat de saphir d'indice de réfraction 1.7 à la longueur d'onde de résonance  $\lambda_R = 3.41 \mu\text{m}$  :  $t_l = \lambda_R / (4\sqrt{1.7})$ . Une contradiction est alors observée. En effet, bien que l'empilement anti-reflet/substrat soit conçu spécifiquement pour que le substrat n'ait pas d'influence sur la réponse optique du filtre, un décalage spectral est visible entre les pics des structures  $C$  et  $D$  (cf encart de la figure 7.5 (b)). La figure 7.5 (b) décompose théoriquement la conception de la structure  $D$  : un intervalle d'air d'épaisseur  $h_{air}$  est introduit entre la structure  $C$  et l'empilement anti-reflet/substrat. On observe alors que le décalage spectral varie en fonction de l'épaisseur  $h_{air}$  de l'intervalle et que les valeurs de ce décalage sont (quasiment) discrètes. Le fait que pour  $h_{air} = 300 \text{ nm}$  il n'y ait aucun décalage spectral montre que la couche anti-reflet supprime effectivement les réflexions. La variation du décalage en fonction de  $h_{air}$  suggère alors l'influence d'ondes évanescentes.

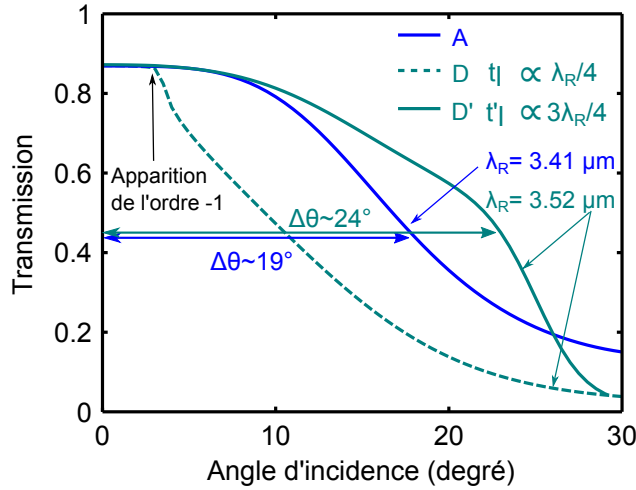
La figure 7.6 présente la transmission en fonction de l'angle d'incidence pour les structures  $A$ ,  $D$  et  $D'$ . Seules les épaisseurs des couches anti-reflet  $t_l$  et  $t'_l$  diffèrent entre les structures  $D$  et  $D'$ , puisque  $t'_l = 3t_l$ . La faible tolérance angulaire de la structure  $D$  s'explique par le fait que l'ordre  $-1$  est propa-





**FIGURE 7.5** – Structure bi-atome symétrique sur substrat. (a) Schéma des structures bi-atome C et D. Les paramètres  $d = 2 \mu\text{m}$ ,  $t_m = 100 \text{ nm}$ ,  $a = 150 \text{ nm}$ ,  $l = 400 \text{ nm}$ ,  $t = 250 \text{ nm}$ ,  $t_2 = 240 \text{ nm}$ ,  $t_{m2} = 30 \text{ nm}$  et  $l_2 = 475 \text{ nm}$  sont identiques pour les deux structures. La couche anti-reflet de la structure D a une épaisseur  $t_l \propto \lambda_R/4\sqrt{1.7}$  pour un substrat de saphir d'indice de réfraction 1.7 avec  $\lambda_R = 3.41 \mu\text{m}$ . (b) Longueur d'onde de résonance  $\lambda_R$  en fonction de la largeur  $h_{\text{air}}$  de l'intervalle d'air entre la structure C et l'empilement anti-reflet/substrat. En encart : spectres de transmission à incidence normale des structures pour  $h_{\text{air}} = 0, 100$  et  $300 \text{ nm}$ , les spectres pour  $h_{\text{air}} = 0$  et  $h_{\text{air}} = 300 \text{ nm}$  coïncidant avec ceux des structures D et C.

gatif dans le substrat à partir d'un angle d'incidence assez petit. L'hypothèse de l'influence des ondes évanescentes est ainsi vérifiée. En effet, l'excitation de l'ordre  $-1$  se fait par effet tunnel des ondes évanescentes à travers la couche anti-reflet. L'hypothèse est indirectement confirmée par la grande tolérance de la structure D' : la couche anti-reflet d'épaisseur  $t'_l = 3t_l$  est dans ce cas assez épaisse pour supprimer l'effet tunnel. Finalement, la tolérance angulaire de la structure D' est même supérieure à celle de la structure originale A ; de plus elle présente une meilleure réjection angulaire que la structure A, ce qui constitue un avantage pour certaines applications. La symétrisation dans le cadre proposé va toujours dans les sens d'un élargissement des fentes du réseau inférieur (via le paramètre  $l_2$  pour la structure bi-atome). Dans le chapitre 6, la symétrisation des filtres sur substrat a montré une certaine limite : le facteur de qualité est légèrement plus faible après symétrisation. Cela s'explique par le fait qu'augmenter la largeur des fentes entraîne une augmentation des pertes radiatives d'autant plus importante que l'indice du substrat est élevé. Cependant, cette tendance est accentuée pour la structure bi-atome possédant deux fentes par période, la seconde étant de plus relativement large. Ainsi, aucune structure bi-atome symétrique sur substrat n'a été obtenue par application du formalisme matriciel en conservant le facteur de qualité quand le réseau d'or inférieur est directement en contact avec le substrat de saphir. Il est probable que le nombre de degrés de liberté soit insuffisant pour concevoir ce type de structures.



**FIGURE 7.6** – Transmission en fonction de l'angle d'incidence à  $\lambda_R = 3.41 \mu\text{m}$  pour la structure suspendue A (ligne bleue) et à  $\lambda_R = 3.52 \mu\text{m}$  pour la structure D avec une couche anti-reflet " $\lambda/4$ " (ligne verte pointillée) et la structure D' avec une couche anti-reflet " $3\lambda/4$ " (ligne verte continue).

## 7.4 Application : limiteur de champ en bande III

Les performances des détecteurs non refroidis (bolomètres) peuvent être perturbées par l'émission thermique parasite de l'environnement, ce qui peut fausser les procédures d'étalonnage. Introduire des limiteurs de champ pour supprimer ces rayonnements parasites est le but du projet FOVEA auquel j'ai participé au cours de ma thèse. Les filtres métal-diélectriques ont ainsi été proposés pour servir de limiteurs de champ dans la mesure où ils peuvent être conçus comme des filtres infrarouge passe-bande tolérants angulairement.

Ces filtres doivent toutefois respecter quelques caractéristiques parmi lesquelles :

- une bonne efficacité de réjection spectrale et angulaire,
- une tolérance angulaire de  $20^\circ$  environ,
- une insensibilité à la polarisation de la lumière,
- un fonctionnement sur la plage  $10 - 14 \mu\text{m}$ , avec une bande transmission la plus large possible.

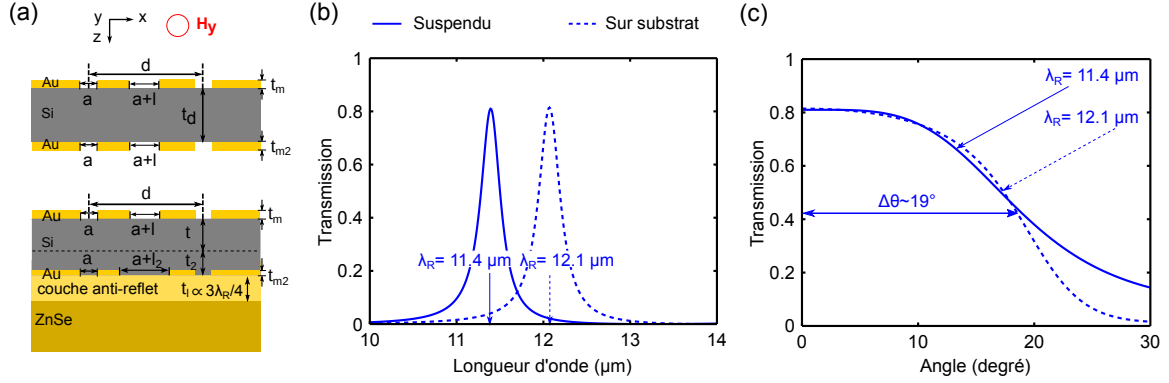
J'ai travaillé à répondre à ces différents critères à partir de la structure bi-atome métal-diélectrique.

### 7.4.1 Choix de matériaux

L'or est conservé pour constituer les réseaux métalliques bi-atome ; la permittivité de l'or est donnée par le modèle de Drude (les paramètres sont indiqués page 77). Le guide d'onde est en silicium et son indice de réfraction est supposé constant et égal à 3.41 sur toute la gamme  $10 - 14 \mu\text{m}$ . Un substrat en sélénure de zinc (ZnSe) est choisi car il est transparent sur la gamme spectrale considérée ; son indice de réfraction est supposé constant et égale à 2.6.

Une structure bi-atome suspendue 1D est tout d'abord conçue avec une réponse optique optimale : sa transmission maximale est d'environ 80% et sa tolérance angulaire est de  $19^\circ$  (cf figures 7.7 (b) et (c)). Ajuster la période  $d$  du réseau et l'épaisseur  $t_d$  de la couche de Si permet de déplacer la longueur

de résonance dans la zone spectrale voulue. Une structure bi-atome symétrique sur substrat est finalement obtenue en changeant les paramètres géométriques de la structure initiale et en insérant une couche anti-reflet " $3\lambda/4$ " comme cela a été fait pour concevoir les structures en bande II<sup>1</sup>. La tolérance angulaire de la structure originale est conservée ( $\Delta\theta = 19^\circ$ ), mais la réjection angulaire est néanmoins meilleure pour la structure sur substrat.



**FIGURE 7.7** – Calcul de la réponse optique de structures bi-atome suspendue et sur substrat de ZnSe. (a) Schéma des structures bi-atome. Les paramètres géométriques de la structure suspendue sont :  $d = 6 \mu\text{m}$ ,  $a = 450 \text{ nm}$ ,  $l = 1200 \text{ nm}$ ,  $t_m = 100 \text{ nm}$ ,  $t_d = 1500 \text{ nm}$ . Les paramètres géométriques de la structure sur substrat sont :  $d = 6 \mu\text{m}$ ,  $a = 450 \text{ nm}$ ,  $l = 1200 \text{ nm}$ ,  $t_m = 100 \text{ nm}$ ,  $t = 750 \text{ nm}$ ,  $t_2 = 740 \text{ nm}$ ,  $t_{m2} = 30 \text{ nm}$  et  $l_2 = 1350 \text{ nm}$  ; la couche anti-reflet a une épaisseur  $t_1 = 3\lambda_R/4\sqrt{2.6}$  pour un substrat d'indice de réfraction 2.6 avec  $\lambda_R = 11.4 \mu\text{m}$ . (b) Spectres de transmission à incidence normale de la structure suspendue (ligne bleue) et de la structure sur substrat (ligne verte). (c) Transmission à  $\lambda_R = 11.4 \mu\text{m}$  pour la structure suspendue (ligne bleue) et  $\lambda_R = 12.1 \mu\text{m}$  pour la structure sur substrat (ligne verte) en fonction de l'angle d'incidence.

#### 7.4.2 Vers des filtres coniques tolérants angulairement

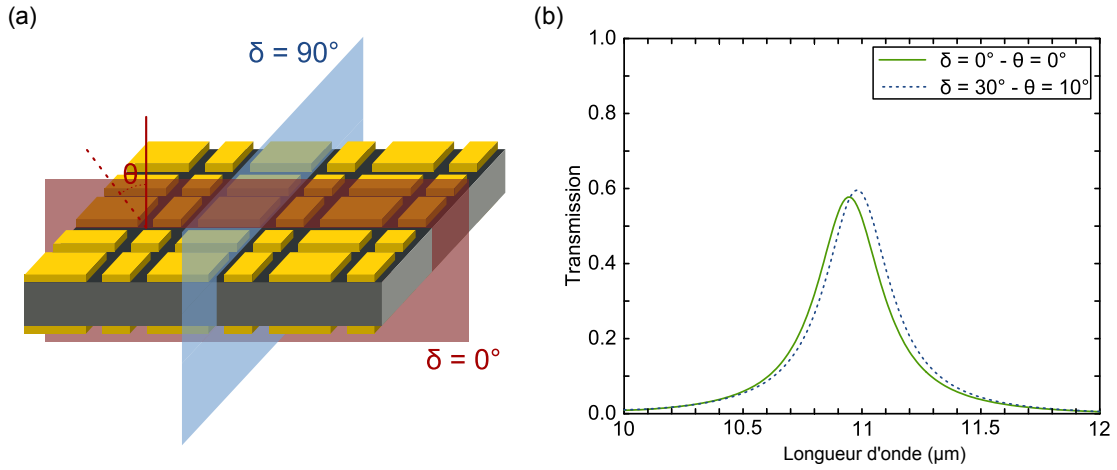
Des structures 2D sont considérées pour rendre les filtres indépendants de la polarisation (figure 7.8). Les filtres bi-atome 2D sont conçus en faisant une transposition exacte des filtres 1D : cela signifie que le même profil est visible si l'on effectue une coupe dans l'or dans un plan  $\delta = 0^\circ$  et dans un plan  $\delta = 90^\circ$ , et que l'on retrouve les mêmes paramètres géométriques que pour les structures 1D (cf figure 7.7 (a)). Les calculs pour les géométries 2D ont été effectués par Grégory Vincent à l'aide du logiciel Reticolo basé sur la méthode RCWA (*Rigorous Coupled Wave Analysis* en anglais).

La figure 7.7 (b) montre le spectre de la structure 2D suspendue pour  $\delta = 0^\circ$  et  $\theta = 0^\circ$  et pour  $\delta = 30^\circ$  et  $\theta = 10^\circ$ . Le maximum de transmission est le même dans les deux situations mais est assez faible par rapport au cas 1D (environ 60%).

## 7.5 Conclusion

Le principe de symétrisation appliqué à des filtres GMR simplement périodiques dans le chapitre 6 peut être étendu aux filtres bi-atome dans la mesure où la résonance repose sur le même mécanisme. Cette démarche est suivie pour concevoir des filtres bi-atome sur substrat, la dissymétrie créée par le

1. En pratique aucun matériau ne correspond exactement à un indice de  $\sqrt{2.6}$  ; pour une réalisation technologique, le dépôt de la couche anti-reflet adaptée serait laissée à un prestataire externe.



**FIGURE 7.8** – (a) Schéma d’une structure bi-atome 2D; l’angle  $\delta$  définit le plan d’incidence et l’angle  $\theta$  l’angle d’incidence dans le plan d’incidence. (b) Spectres de transmission de la structure 2D suspendue pour  $\delta = 0^\circ$  et  $\theta = 0^\circ$  et pour  $\delta = 30^\circ$  et  $\theta = 10^\circ$ .

substrat pouvant être supprimée. En effet, la structure suspendue de départ ne peut pas être fabriquée. La symétrisation permet ainsi de restaurer la réponse optique optimale de la structure symétrique originale. Cela conduit également à contourner certaines contraintes liées au procédé de fabrication. La conception sur substrat prévoit l’intégration d’une couche anti-reflet dont l’optimisation est nécessaire pour garantir les tolérances et réjections angulaires les plus favorables.

D’abord proposée pour un fonctionnement des filtres en bande II et une géométrie 1D, cette conception est transposée en bande III et appliquée de façon identique à une géométrie 2D. Le maximum de transmission est cependant assez faible dans ce cas.

## Références

- [1] F. Lemarchand, A. Sentenac, and H. Giovannini, “Increasing the angular tolerance of resonant grating filters with doubly periodic structures,” *Optics letters* **23**, 1149–1151 (1998).
- [2] F. Lemarchand, A. Sentenac, E. Cambril, and H. Giovannini, “Study of the resonant behaviour of waveguide gratings : increasing the angular tolerance of guided-mode filters,” *Journal of Optics A : Pure and Applied Optics* **1**, 545 (1999).
- [3] E. Sakat, “Metal-dielectric guided mode resonance structures and applications to filtering and infrared imaging,” Thèse, Ecole Polytechnique X (2013).
- [4] E. Sakat, S. Héron, P. Bouchon, G. Vincent, F. Pardo, S. Collin, J.-L. Pelouard, and R. Haïdar, “Metal-dielectric bi-atomic structure for angular-tolerant spectral filtering,” *Opt. Lett.* **38**, 425–427 (2013).
- [5] T. Estruch, J. Jaeck, F. Pardo, S. Derelle, J. Primot, J.-L. Pelouard, and R. Haïdar, “Perfect extinction in subwavelength dual metallic transmitting gratings,” *Opt. Lett.* **36**, 3160–3162 (2011).
- [6] C. Tardieu, T. Estruch, G. Vincent, J. Jaeck, N. Bardou, S. Collin, and R. Haïdar, “Extraordinary optical extinctions through dual metallic gratings,” *Optics Letters* **40**, 661–664 (2015).

- [7] J. Le Perchec, R. E. de Lamaestre, M. Brun, N. Rochat, O. Gravrand, G. Badano, J. Hazart, and S. Nicoletti, “High rejection bandpass optical filters based on sub-wavelength metal patch arrays,” *Optics express* **19**, 15720–15731 (2011).
- [8] C.-H. Park, Y.-T. Yoon, and S.-S. Lee, “Polarization-independent visible wavelength filter incorporating a symmetric metal-dielectric resonant structure,” *Optics express* **20**, 23769–23777 (2012).



## Résumé & perspectives

Lors de cette thèse, je me suis intéressée à la conception de structures sub-longueur d'onde pour l'infrarouge. Cela m'a conduit à explorer différents domaines techniques :

- le développement de nouveaux procédés et la fabrication de nanomatériaux en salle blanche,
- l'expérimentation optique par spectroscopie FTIR résolue angulairement,
- le développement de codes pour le traitement des données expérimentales et le calcul des réponses optiques de structures.

Le manuscrit résume ces différents travaux en deux parties.

La **partie I** porte sur la mesure d'indices optiques de matériaux homogènes. Dans le **chapitre 3**, j'ai proposé et étudié théoriquement une méthode de détermination de coefficients complexes à partir de réseaux diffractifs constitués du matériau à caractériser. Le matériau caractérisé peut être composites : dans ce cas, "homogène" signifie que la propagation dans le matériau est dominé par un seul mode. Pour les matériaux artificiels homogènes, un indice effectif ne peut pas toujours être attribué. La surface iso-fréquence suffit alors pour décrire entièrement la propagation dans toutes les directions du matériau. Le but est d'extraire les coefficients de transmission et réflexion  $t$  et  $r$  correspondant à une lame de ce matériau, en mesurant les intensités diffractées par les réseaux : les avantages de cette méthode sont exposés dans le **chapitre 2**, dans lequel j'examine par ailleurs plusieurs autres méthodes. Les coefficients  $r$  et  $t$  ainsi obtenus sont inversés de façon à obtenir l'indice optique, suivant un algorithme introduit dans le **chapitre 1**.

Le **chapitre 4** résume les résultats expérimentaux obtenus par cette méthode. Je l'ai tout d'abord appliquée à la caractérisation du SiNx : j'ai donc fabriqué des réseaux suspendus en SiNx. Très fragiles, les échantillons en SiNx n'ont pas permis d'atteindre l'objectif final de détermination de l'indice du SiNx. Deux limitations sont rencontrées :

- l'épaisseur inhomogène des échantillons,
- la précision des mesures d'intensités diffractées.

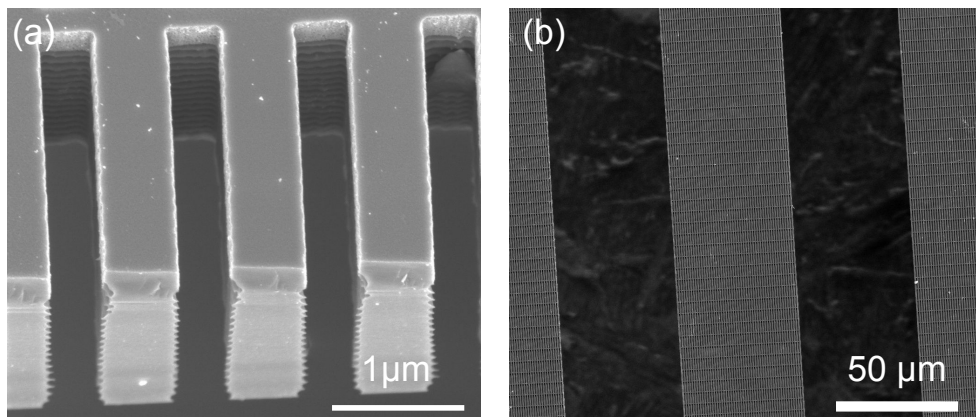
En effet, le SiNx est attaqué chimiquement lors de la gravure du substrat pour libérer les membranes. La correspondance imparfaite entre le coefficient  $|t|^2$  et la transmission  $T$  d'une membrane non structurée pourrait donc être due à l'inhomogénéité des échantillons. En réflexion, la précision des mesures

d'ordres diffractés est moins bonne du fait de la configuration du montage, ce qui ne permet pas d'accéder au coefficient  $r$ .

J'ai donc proposé d'appliquer la méthode au silicium cristallin. De même, des réseaux suspendus en silicium ont ainsi été fabriqués. Leur épaisseur est 5 fois plus importante que celle des échantillons en SiNx ; de plus leur surface n'est pas attaquée comme le SiNx.

La mesure des réseaux en silicium reste une perspective de mon travail. Pour un matériau non absorbant, il n'est pas nécessaire d'effectuer des mesures en réflexion (le silicium n'est pas absorbant au moins jusqu'à  $\lambda = 10 \mu\text{m}$  suivant le taux de dopage). En effet, le coefficient complexe  $r$  peut être obtenu à partir du coefficient  $t$ . En plus de garantir une plus grande solidité aux échantillons suspendus, l'épaisseur plus importante devrait permettre de déterminer l'indice avec une incertitude plus faible.

Des nanomatériaux artificiels 1D air/silicium suspendus ont également été fabriqués et structurés en réseaux diffractifs dans le but d'appliquer la méthode expérimentale. Étendre cette méthode à incidence oblique devrait permettre de mettre en évidence à la fois l'anisotropie et la dispersion spatiale du matériau. Ces mesures pourraient permettre d'étudier la validité des coefficients de Fresnel dans le domaine sub-longueur d'onde, alors que le phénomène de dispersion spatiale est observé. En effet, dans l'approximation du mode fondamental, l'algorithme d'inversion suppose que le formalisme de Fresnel peut être appliqué ; or il conviendrait de séparer la description des transmission/réflexion à l'interface d'un matériau composite et la propagation à l'intérieur.



(a) Image par microscopie électronique à balayage d'un matériau artificiel air/silicium nanostructuré : le Si1D. (b) Image d'un réseau diffractif suspendu constitué du Si1D.

La **partie II** traite de la conception de filtres métal-diélectriques à résonance de mode guidé. Le **chapitre 5**, d'introduction au filtrage spectral, présente également les propriétés des filtres GMR métal-diélectriques étudiés. La conception de filtres GMR avec une bonne réjection et une forte tolérance angulaire est exposée. Cependant, les calculs de réponse optique des filtres se font en considérant systématiquement des structures suspendues dans l'air. Le problème de la symétrie se pose alors pour concevoir des structures GMR sur substrat, car pour les structures GMR considérées un substrat.



La réponse optique des filtres GMR est expliquée par un modèle à deux modes. L'introduction d'un formalisme matriciel permet de calculer la transmission prévue par le modèle et de formuler un critère de symétrie. Dans le chapitre 6, je montre que satisfaire ce critère permet de restaurer la réponse optique des filtres suspendus originaux définie par la position du pic de transmission, le maximum de transmission et le facteur de qualité.

Dans le chapitre 7, je conçois des filtres GMR tolérants angulairement sur substrat en appliquant ce cadre mathématique. Dans ce cas, une couche anti-reflet est insérée entre le substrat et la structure métal- diélectrique. La symétrie cette nouvelle structure est établie, garantissant le même facteur de qualité et le même maximum de transmission que la structure suspendue originale. La couche anti-reflet est optimisée, et une tolérance angulaire supérieure à celle de la structure originale est obtenue ; une meilleure efficacité de réjection angulaire est également observée.

Par la suite, des filtres GMR sur substrat 1D pourront être conçus et fabriqués en utilisant ce formalisme matriciel. Les filtres 2D tolérants angulairement sont proposés pour rendre les structures indépendantes de la polarisation de la lumière. A ce stade, ils présentent un maximum de transmission de 60% (80% pour les filtres 1D) et pourront être améliorés.



## ***Annexes***



## Annexe A

# Fabrication d'échantillons suspendus

Certaines étapes et résultats obtenus lors de la fabrication d'échantillons suspendus en SiNx et silicium sont détaillés ici. Ces éléments ont pour but de justifier l'analyse des résultats expérimentaux présentés dans le chapitre 4. Ainsi, la gravure chimique non souhaitée du SiNx, la protection de la couche de SiNx lors de la gravure du substrat de silicium et les propriétés mécaniques des matériaux sont discutées et les difficultés rencontrées sont résumées.

### A.1 Gravure chimique du SiNx

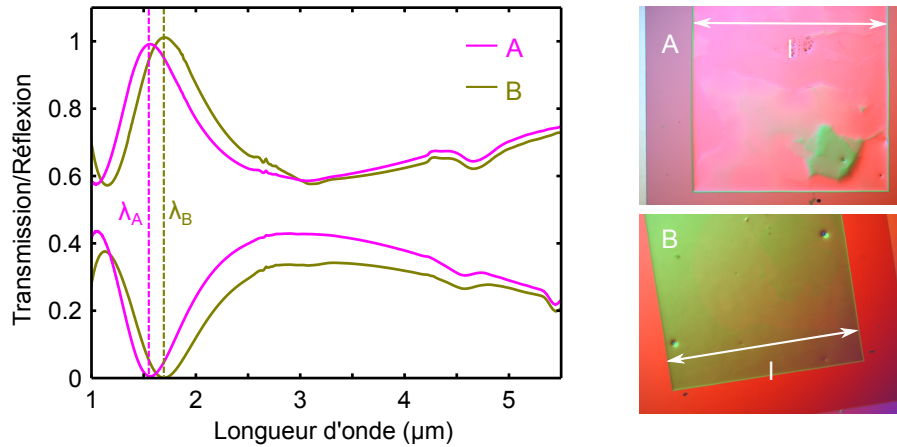
Les spectres de transmission de membranes non structurées  $A$  et  $B$  effectués à partir du même dépôt de PECVD, c'est-à-dire de même épaisseur nominale  $d = 500$  nm sont montrés sur la figure A.1. Les maxima de transmission pour les membranes  $A$  et  $B$  (correspondant à des minima de réflexion) dûs à la résonance FP d'ordre 1 sont distincts :  $\lambda_A = 1.54 \mu\text{m}$  et  $\lambda_B = 1.70 \mu\text{m}$ . De plus, les membranes ont de couleurs différents et celle de la membrane  $A$  est même inhomogène. Cela indique une diminution de l'épaisseur de la membrane  $A$  par rapport à l'épaisseur initiale  $d$  (celle de la membrane  $B$ ). Ainsi, une épaisseur  $d'$  de la membrane  $A$  peut être extrapolée en supposant que les deux membranes ont toutefois le même indice de réfraction :  $d' = d \frac{\lambda_A}{\lambda_B} \approx 450$  nm. Cependant, l'hypothèse est que cette attaque est due à l'action du TMAH lors de la gravure du substrat. Cette gravure serait alors isotrope et conduirait par conséquent à une couche d'épaisseur variable en fonction de la position.

### A.2 Protection de la couche de SiNx

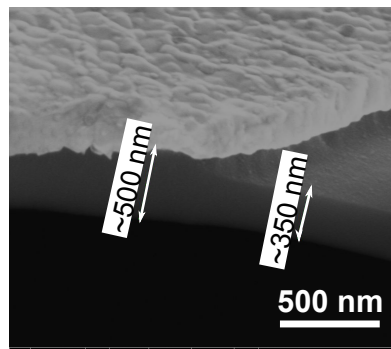
La gravure du silicium par les TMAH n'est pas entièrement sélective vis-à-vis du SiNx. Ainsi, comme la gravure du substrat de silicium d'épaisseur  $300 \mu\text{m}$  dure 8 heures, il est nécessaire de protéger la surface du réseau d'or posé sur une membrane en SiNx lors de cette étape.

#### Aucune protection

En effet, ne pas protéger une couche de SiNx d'épaisseur initiale  $500$  nm conduit à une épaisseur de SiNx de  $350$  nm à l'issue de la gravure au TMAH dans le cas présenté sur la figure A.2. La gravure, isotrope, rend de plus l'épaisseur des bandes de SiNx inhomogène. Deux autres possibilités ont été testées.



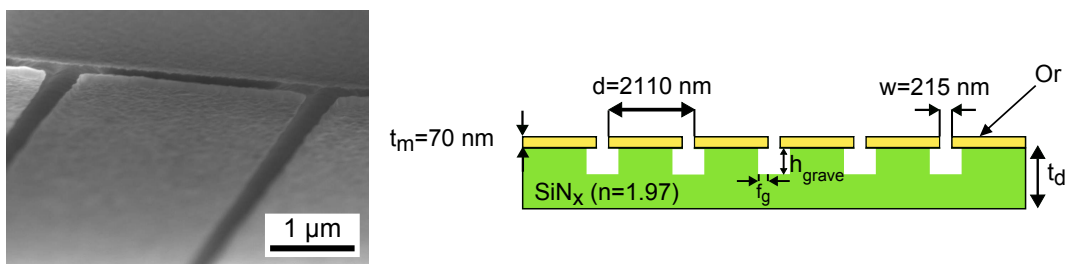
**FIGURE A.1** – Spectres de transmission et réflexion de deux membranes non structurées en SiNx A et B ; des maxima de transmission sont indiqués à  $\lambda_A = 1.54 \mu\text{m}$  et  $\lambda_B = 1.70 \mu\text{m}$ . Images au microscope optique des membranes A et B de largeur  $l$ .



**FIGURE A.2** – Image MEB d'un réseau d'or sur une membrane non structurée en SiNx à l'issue de la gravure du substrat dans le TMAH.

### Masque de silice

Une couche de protection en silice est possible car le TMAH n'attaque pas la silice. Cependant la couche est retirée par une solution de fluorure d'ammonium (AF). L'image de la figure A.3 indique une sous-gravure de la couche SiNx sous un réseau un réseau due à l'action de l'AF sur le SiNx. Le retrait de la couche de silice peut donc conduire à la gravure du SiNx, en faces avant et arrière.



**FIGURE A.3** – Image MEB mettant en évidence la sous-gravure de la couche de SiNx pour un réseau d'or sur une membrane non structurée (image extraite de la thèse d'Émilie Sakat [1]).

### Protek B3

La résine Protek B3 est une résine thermodurcissable spécialement conçue pour protéger la face avant des dispositifs lors de gravure sur la face arrière. Cette résine est ensuite retirée par voie humide dans un solvant organique. La notice de cette résine indique que si une monocouche de produit persiste, des particules peuvent se former en surface (cf figure A.4). Une gravure par plasma d'O<sub>2</sub> de 500 W est préconisée afin de prévenir la formation de ces particules. Une gravure par plasma d'O<sub>2</sub> a bien été réalisée sur cet échantillon mais la puissance était uniquement de 5 W.

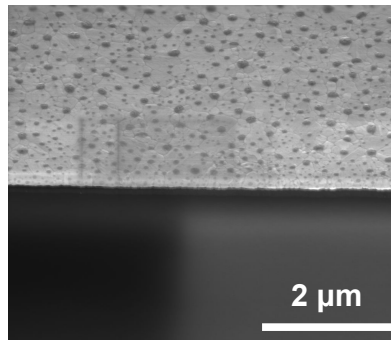


FIGURE A.4 – Image MEB d'une surface d'or présentant des nanoparticules formées à partir de résidus de Protek B3.

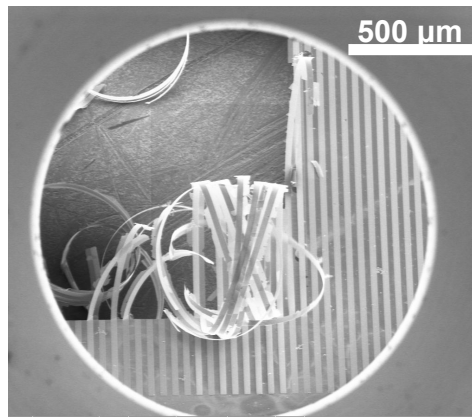
## A.3 Propriétés mécaniques des échantillons suspendus

### Contrôle des contraintes mécaniques

Le procédé de fabrication des échantillons suspendus en SiNx débute par le contrôle des propriétés mécaniques des dépôts de SiNx par PECVD [2]. Des contraintes en tension sont obtenues en effectuant des recuits à haute température (400°) des couches de SiNx. Les propriétés mécaniques du SiNx, fortement dépendantes de la stoechiométrie, sont ajustées en faisant diffuser les atomes d'hydrogène hors du matériau [3]. Cependant, un excès de contrainte en tension, peut conduire à une rupture de la membrane comme l'illustre la figure A.5. Il s'agit de la plus grande difficulté rencontrée dans la fabrication d'échantillons suspendus en SiNx : la rupture aléatoire des membranes associée à la gravure du SiNx n'a pas permis d'obtenir les trois types d'échantillons de même épaisseur initiale et finale nécessaires pour l'emploi de la méthode.

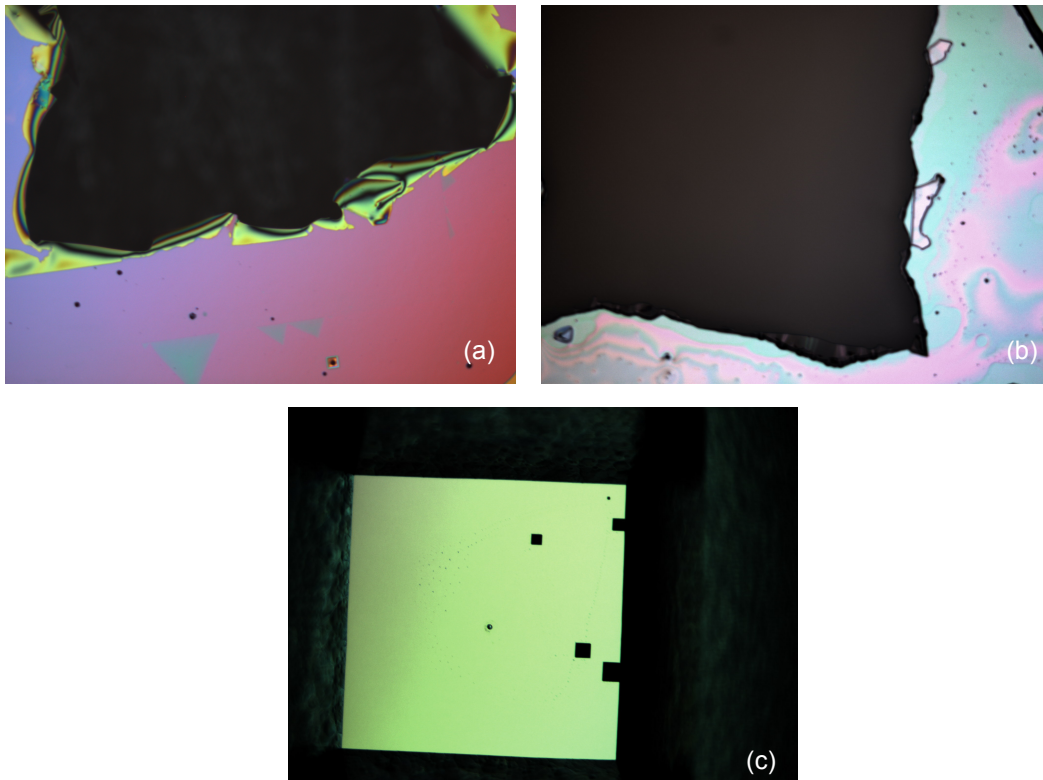
### Epaisseur des échantillons suspendus

L'excès de contrainte en tension n'est pourtant pas la seule cause de casse des échantillons suspendus. Les figures A.6 (a) et (b) comparent des membranes cassées en SiNx et silicium d'environ même épaisseur (500 nm) : les images témoignent du caractère non contraint du silicium contrairement au SiNx. Cependant aucune membrane fabriquée à partir d'un substrat SOI Si/SiO<sub>2</sub>/Si 0.7 µm/1 µm/700 µm n'a pu être obtenue intacte. Finalement, en suivant le même procédé de fabrication, des membranes en silicium d'épaisseur 2.8 µm sont pourtant obtenues à partir d'un substrat SOI 3 µm/0.3 µm/700 µm avec un taux de réussite proche de 100%. Les membranes résistent même percées par endroit (cf



**FIGURE A.5** – Image MEB d'un réseau d'or sur une membrane non structurée en SiNx (rompue) à la fin de procédé de fabrication.

figure A.6 (c)). L'épaisseur est le principal facteur affectant la solidité des échantillons suspendus en silicium.



**FIGURE A.6** – Images de membranes de largeur environ 2 mm par microscopie optique, (a) en SiNx d'épaisseur 500 nm, (b) en Si d'épaisseur  $\sim 500$  nm, et (c) d'épaisseur  $2.8 \mu\text{m}$ .



## Références

- [1] E. Sakat, “Metal-dielectric guided mode resonance structures and applications to filtering and infrared imaging,” Thèse, Ecole Polytechnique X (2013).
- [2] G. Vincent, S. Collin, N. Bardou, J.-L. Pelouard, and R. Haïdar, “Large-area dielectric and metallic freestanding gratings for mid-infrared optical filtering applications,” *Journal of Vacuum Science & Technology B* **26**, 1852–1855 (2008).
- [3] G. Raymond, “Etude mécanique des films de nitrure de silicium fortement contraints utilisés pour augmenter les performances des transistors CMOS,” Theses, Institut National Polytechnique de Grenoble - INPG (2009).



## Annexe B

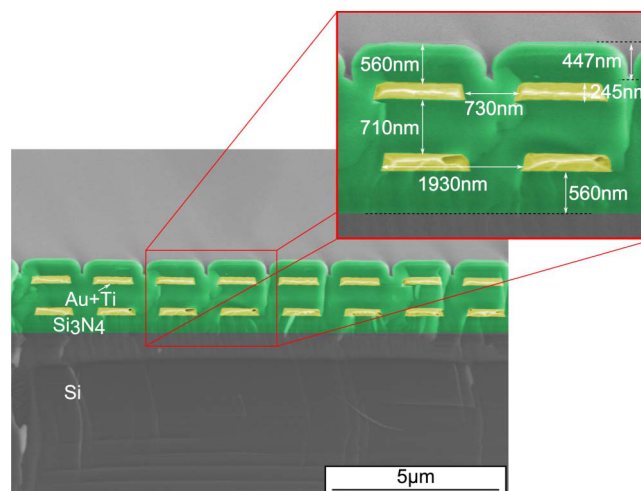
# Fabrication de la structure bi-atome

L'or constituant les structures composées de deux réseaux métalliques de part et d'autre d'une couche diélectrique ne peut pas servir de base à des structures suspendues. Deux solutions alternatives sont ainsi proposées pour fabriquer des structures semblables à la structure bi-atome :

- l'encapsulation des réseaux métalliques dans une couche de diélectrique,
- la fabrication de la structure sur substrat avec planarisation du réseau inférieur.

### B.1 Fabrication d'une structure suspendue encapsulée

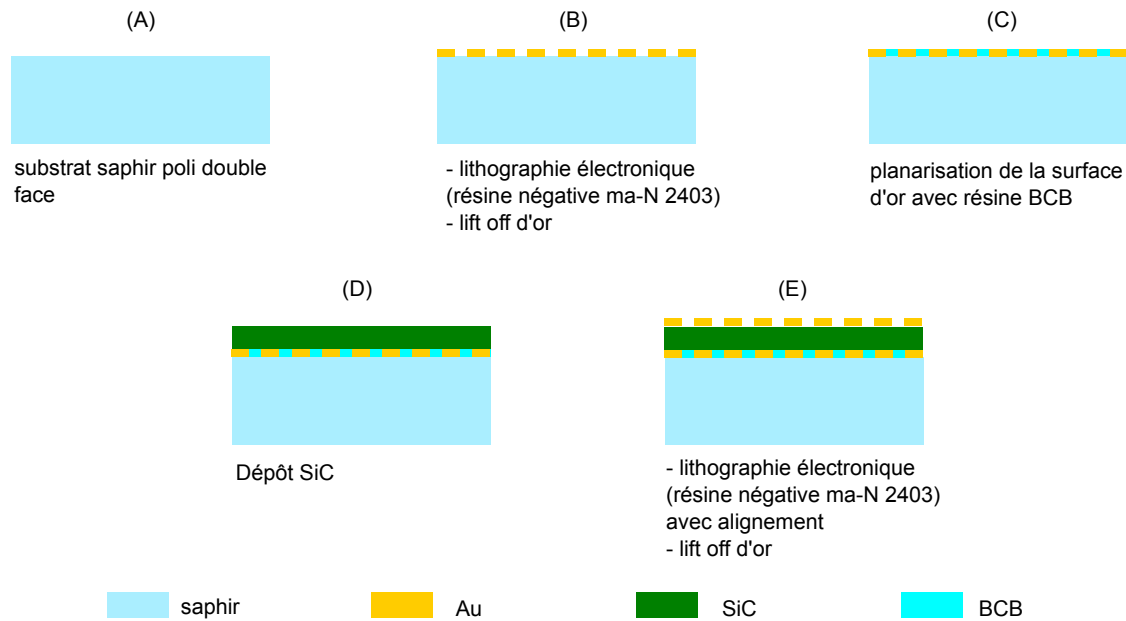
Ce procédé est adapté à partir de celui développé par Grégory Vincent pour fabriquer des membranes et réseaux en nitrure de silicium ( $\text{SiN}_x$ ) [1] ; il consiste à alterner les dépôts de  $\text{SiN}_x$  avec des étapes de lithographie électronique, dépôts métalliques et lift-off permettant de définir les réseaux d'or [2]. La fabrication débute par le dépôt d'une couche continue de diélectrique. Le substrat de silicium est gravé à la fin du procédé pour libérer la membrane. Le résultat illustré par la figure B.1 montre les deux réseaux d'or encapsulés dans une couche de  $\text{SiN}_x$  avant la gravure du substrat.



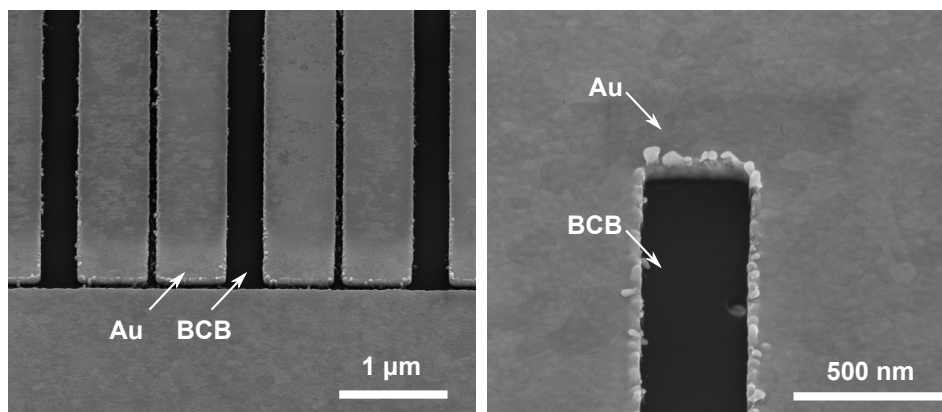
**FIGURE B.1** – Image extraite de la référence [2]. Vue de coupe par microscopie électronique à balayage de deux réseaux d'or encapsulés dans une couche de  $\text{SiN}_x$  avant gravure du substrat de silicium pour définir la membrane.

## B.2 Fabrication sur substrat

Le second procédé, résumé sur la figure B.2, consiste à fabriquer la structure sur un substrat de saphir. La première étape est la structuration du réseau d'or inférieur ; les fentes de ce réseau sont ensuite remplies d'une résine planarisante, le BCB. La fabrication se poursuit par le dépôt de la couche de diélectrique et la structuration du réseau d'or supérieur.



**FIGURE B.2** – Proposition d'un procédé de fabrication pour une structure avec deux réseaux d'or de part et d'autre d'un guide d'onde en SiC (par exemple la structure bi-atome) posée sur un substrat de saphir.



**FIGURE B.3** – Images par microscopie électronique à balayage d'un réseau d'or "bi-atome" avec des fentes partiellement remplies à l'issue de la gravure plasma du BCB.

La planarisation est une étape critique de ce procédé. En effet, la résine BCB est répartie dans les fentes du réseau par enduction centrifuge. Ensuite, la gravure plasma de cette résine à hauteur du réseau d'or est sensée créer une interface plane. Cependant, il est expérimentalement difficile d'arrêter la gravure

au bon moment : un contrôle de l'épaisseur de BCB est effectué à un endroit donné, or la vitesse de gravure n'est pas la même en tout point de l'échantillon. Ainsi, la figure B.3 montre une épaisseur de BCB inférieure à celle du réseau d'or à l'issue de la gravure plasma.

## Références

- [1] G. Vincent, S. Collin, N. Bardou, J.-L. Pelouard, and R. Haïdar, "Large-area dielectric and metallic freestanding gratings for mid-infrared optical filtering applications," *Journal of Vacuum Science & Technology B* **26**, 1852–1855 (2008).
- [2] C. Tardieu, T. Estruch, G. Vincent, J. Jaeck, N. Bardou, S. Collin, and R. Haïdar, "Extraordinary optical extinctions through dual metallic gratings," *Optics Letters* **40**, 661–664 (2015).



# Index

## A

anisotrope ..... 14, 15, 25, 36, 38

## B

biaxe ..... 8, 11, 12, 15, 17

biréfringence de forme ..... 10

Bloch

    constante de propagation ..... 16, 20

    harmonique de ..... 29

    impédance ..... 16, 20

    indice ..... 15

    mode ..... 15, 16, 18, 29, 30

Brillouin, zone de ..... 76

## C

cape d'invisibilité/*cloaking* ..... 27

chiralité ..... 14

corps noir ..... 70

cristaux photoniques ..... 15, 17, 28

## D

diffraction ..... 17

    limite de ..... 17

    réseau ..... 29, 30, 33, 35

diffusion ..... 12, 27, 30

dispersion spatiale .... 14, 15, 17, 20, 21, 25, 27

Drude, modèle de ..... 42, 44, 77, 84, 96

Drude-Lorentz, modèle de ..... 40, 47

## E

effets non-locaux ..... voir dispersion spatiale

extinction extraordinaire ..... 75

## F

Fabry-Perot (filtre) ..... 77, 78, 92

Fabry-Perot (résonance) ..... 62, 77

facteur de qualité ..... 73, 78, 79, 83

Fano, résonance de ..... 74

méthode FDTD (*Finite-Difference*

*Time-Domain*) ..... 26, 29

Fourier

    méthode modale ..... 26

    série de ..... 34, 35

    spectroscopie FTIR (*Fourier Transform*

*InfraRed*) ..... 26, 29, 33, 42, 54

    transformée de ..... 42, 55

Fresnel, coefficients de ..... 30, 36–38, 40

## H

hyperbolique ..... voir indéfini

## I

indéfini ..... 12, 27, 28

milieu indéfini ..... 12, 28, 38

indice effectif ..... 15–17

interférométrie ..... 29

surface/courbe isofréquence .. 8, 10, 12–15, 17,  
25

## K

Kirchhoff, loi de ..... 71

## L

limite quasi-statique ..... 8–11, 13, 30

lithographie électronique ..... 97, 119

- 
- lithographie UV ..... 52  
longueur de cohérence ..... 90
- M**  
métamatériau ..... 8, 12, 14–18, 26–29, 41  
main-gauche ..... 8, 12, 15, 29, 38  
matrices S (matrices de *scattering*), formalisme  
de ..... 18, 36, 38–40  
matrices T (matrices de transfert), formalisme  
de ..... 18, 40  
Maxwell, équations de ..... 14  
Maxwell-Garnett, théorie de ..... 11, 12, 26  
microscopie en champ proche ..... 27
- O**  
ouverture de gap ..... 76
- P**  
permittivité nulle ..... 14, 29  
Planck, loi de ..... 70  
Poynting, vecteur de ..... 8
- R**  
réflexion totale interne ..... 96  
réfraction négative ..... 11–14, 38  
réjection ..... 74, 83, 95  
réjection angulaire ..... 97, 101
- réseau, formule de ..... 56  
réseau, formule du ..... 13, 16  
résolution spectrale ..... 33, 42  
Rayleigh  
formule de ..... 11  
longueur d’onde/anomalie de ..... 13, 16  
rayonnement *Nightglow* ..... 71
- S**  
sélectivité spectrale ..... 73, 78  
scattering ..... voir diffusion  
spectre électromagnétique ..... 69  
spectroscopie infrarouge ..... 71  
super-lentille ..... 15, 27, 29
- T**  
temps caractéristique ..... 79  
transmission extraordinaire ..... 72
- U**  
uniaxe ..... 8, 11, 12, 15, 17, 38
- V**  
vitesse de groupe ..... 12, 25
- W**  
Wien, loi de ..... 70



## Résumé

Les travaux de cette thèse portent sur la conception de structures sub-longueur d'onde pour l'optique infrarouge. Deux approches se distinguent.

En premier lieu, j'ai étudié une méthode indirecte de caractérisation optique applicable à des structures sub-longueur d'onde considérées comme des matériaux homogènes : elle consiste à mesurer par spectroscopie infrarouge les intensités diffractées par des réseaux de période très grande devant la longueur d'onde, et constitués du matériau à caractériser. J'ai mis en œuvre cette méthode dans le but de la valider en déterminant l'indice de réfraction complexe du nitrure de silicium. J'ai également proposé d'appliquer cette méthode à des nanomatériaux artificiels dans le but de caractériser leur anisotropie et de mettre en évidence le phénomène de dispersion spatiale spécifique au domaine sub-longueur d'onde, dont dépendent étroitement les propriétés optiques.

Dans un second temps, j'ai introduit un formalisme matriciel pour concevoir des filtres infrarouge passe-bande sur substrat. Dans ce cas, les propriétés optiques des structures sub-longueur d'onde métal-diélectriques étudiées sont dues à des résonances de modes guidés résultant de l'interaction complexe de plusieurs ordres diffractés entre eux. Ce formalisme permet de modéliser la réponse optique des filtres, et de définir un critère de symétrie. J'ai finalement montré qu'il est possible de concevoir des filtres symétriques sur substrat, et par là même d'optimiser leur réponse optique en termes de maximum de transmission, de facteur de qualité, de tolérance angulaire et d'efficacité de réjection.

**Mots-clés : Infrarouge, sub-longueur d'onde, optique, nanomatériaux, résonateur, filtrage spectral.**

---

## Abstract

This work aims at designing infrared optical components based on subwavelength structures. Two different approaches can be followed.

Firstly, I studied an indirect optical characterization method suitable for subwavelength structures considered as homogeneous materials : it consists in measuring the intensities diffracted by gratings with periods much larger than the wavelength, the gratings being made of the materials to be characterized. I have implemented this method to determine the complex refractive index of silicon nitride as a validation. Moreover, I have shown that applying this method to artificial nanomaterials would allow to characterize their anisotropy and would permit to evidence the spatial dispersion phenomenon specific of the subwavelength domain, both being very important to understand the optical properties. Secondly, I introduced a matrix formalism to design infrared band-pass filters on substrate. The optical properties of the metal-dielectric subwavelength structures considered in that case are due to guided-mode resonances originating from complex interactions between diffracted orders. This formalism allows to model the optical response of these filters ; a symmetry criterion is also formulated. I have finally shown that symmetric filters on substrate can be designed with an optimal optical response valued with respect to the transmission maximum, the quality factor, the angular tolerance and the rejection.

**Keywords : Infrared, subwavelength, optics, nanomaterials, resonator, spectral filtering.**